



Contribution à l'étude de paramètres influençant les propriétés mécaniques de fibres élémentaires de lin : Corrélation avec les propriétés de matériaux composites

Nicolas Andre Michel Martin

► To cite this version:

Nicolas Andre Michel Martin. Contribution à l'étude de paramètres influençant les propriétés mécaniques de fibres élémentaires de lin : Corrélation avec les propriétés de matériaux composites. Matériaux. Université de Bretagne Sud, 2014. Français. NNT : 2014LORIS355 . tel-01194534

HAL Id: tel-01194534

<https://theses.hal.science/tel-01194534>

Submitted on 7 Sep 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



THESE / UNIVERSITE DE BRETAGNE-SUD

sous le sceau de l'Université européenne de Bretagne

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE BRETAGNE-SUD

Mention : Science pour l'ingénieur

Ecole doctorale SICMA

présentée par

Nicolas MARTIN

Contribution à l'étude de
paramètres influençant les
propriétés mécaniques de fibres
élémentaires de lin.
Corrélation avec les propriétés
de matériaux composites.

Thèse soutenue le 17 décembre 2014

devant le jury composé de :

Moussa Gomina

Chargé de recherche CNRS HDR, ENSICAEN / Rapporteur

Laurent Guillaumat

Professeur des Universités, Ensam Angers / Rapporteur

Frédéric Jacquemin

Professeur des Universités, Université de Nantes / Président du Jury

Vincent Keryvin

Professeur des Universités, Université de Bretagne-Sud / Examinateur

Nicolas Mouret

Responsable R&D, Van Robaeys Frères / Invité

Jean-Pierre D'Arras

PDG, Van Robaeys Frères / Invité

Peter Davies

Chercheur HDR, Ifremer Centre de Bretagne / Co-directeur de thèse

Christophe Baley

Professeur des Universités, Université de Bretagne-Sud / Directeur de thèse

Remerciements

Les travaux de recherche présentés dans ce manuscrit de thèse ont été réalisés dans le cadre d'un doctorat CIFRE entre le laboratoire d'ingénierie des matériaux de Bretagne (LIMATB) à Lorient, le laboratoire comportement des structures en mer (LCSM) du centre de Bretagne de l'Institut français de recherche pour l'exploitation de la mer (IFREMER) à Plouzané, et la société Van Robaeys Frères S.A., à Killem.

Je tiens tout d'abord à remercier Monsieur Frédéric JACQUEMIN, Professeur à l'Université de Nantes, pour avoir présidé ma soutenance de thèse. Je remercie ensuite Monsieur Moussa GOMINA, Chargé de recherche à l'ENSICAEN et Monsieur Laurent GUILLAUMAT, Professeur à l'ENSAM d'Angers pour avoir accepté d'étudier mon manuscrit en tant que rapporteurs. Je tiens également à remercier Monsieur Vincent KERYVIN, Professeur à l'Université de Bretagne-Sud pour avoir accepté d'être examinateur.

Je remercie mes deux directeurs de thèse Monsieur Christophe BALEY Professeur à l'Université de Bretagne-Sud et Monsieur Peter DAVIES, chercheur à l'IFREMER. Christophe, Peter, je vous remercie sincèrement pour votre expertise, vos conseils, et les échanges que nous avons eus. Je vous remercie également pour vos qualités humaines, votre disponibilité, votre écoute, votre humilité. J'espère que nous serons de nouveau amenés à travailler ensemble.

Je souhaite bien sur remercier l'entreprise qui m'a accueillie pendant presque 4 ans. Je remercie tout d'abord Monsieur Jean-Pierre D'ARRAS, PDG de Van Robaeys Frères. Monsieur D'ARRAS, je vous remercie de m'avoir fait confiance et laissé une certaine latitude pour mes travaux. Je pense par ailleurs que vous m'avez transmis la passion du lin. Je remercie chaleureusement Nicolas MOURET mon encadrant côté entreprise. Nicolas, je te remercie pour la confiance que tu m'as accordée et pour m'avoir soutenu dans les travaux de thèse. Merci également pour les moments passés lors de mes visites à Killem : les friteries, les discussions, les essais hasardeux. Je remercie par ailleurs Emmanuel YOSSE et l'ensemble du personnel de Van Robaeys. Un remerciement spécial pour Gilles SCHRICKE. Merci Gilles, pour ta connaissance des machines et pour m'avoir fait découvrir le carnaval de Dunkerque avec Les Zwingelaers. Je souhaiterais remercier également Pierre D'ARRAS qui a initié au tout début le projet de thèse.

Je souhaiterais maintenant remercier l'ensemble des membres permanents du LIMATB, pour leur disponibilité et leur gentillesse. Tout d'abord, merci à Monsieur Yves GROHENS

pour m'avoir accueilli au LIMATB en tant que Directeur du laboratoire de l'époque. Un grand merci à Alain BOURMAUD et Antoine LE DUIGOU pour leurs conseils avisés et pour les détails du quotidien. Merci également à Antoine K, Isabelle, Hervé, Françoise, Anthony, j'espère que quelqu'un me remplacera efficacement pour salir les paillasses ou mettre les machines en panne !

Merci à mes différents collègues doctorants pour ces quelques années à partager le même bureau. Dans l'ordre d'arrivée Guillaume, Anaële, Laëtitia, Clément, Justin. Merci pour les échanges sur nos travaux et la très bonne ambiance tous les jours.

L'ambiance au labo et hors du labo fut très bonne grâce à la bonne humeur de tous, je remerciais donc toutes les personnes qui ont rendu le quotidien agréable. Je pense en particulier à Abdel, Antonio, Aparna, Benjamin, Benoit, Clara, Colin, David, Dounia, Erwan, Frédéric, Guillaume, Grégoire, Kevin, Kishore, Marianne, Marie-Aline, Marine, Mohcine, Morgan, Morgane, Pierre, Samia, Sananda, Suvam, Tung, Yves-Marie, Alex, Cédric, Fanny, Marion, Germain, Julien, Ronan et tous ceux que j'ai oubliés.

Mention spéciale pour mes collègues surfeurs. Merci pour ces sessions du midi, du soir ou de l'aube en votre compagnie. De la « falaise » jusqu'à Toulhars en passant par la « poissonnerie », il y avait toujours des gens motivés pour se mettre quelques vagues sous les pieds, en particulier un homme déterminé armé d'une planche rouge.

Je remercie sincèrement ma famille et mes amis proches qui m'ont soutenu dans ma démarche. Merci à ma maman pour la relecture de mon manuscrit.

Enfin toutes mes pensées vont à Emeline qui m'a soutenu et supporté jusqu'à la dernière seconde. Les dernières semaines de rédaction ont en effet été difficiles pour nous deux. Ces moments sont maintenant derrière nous. Je te remercie pour tes encouragements, ta patience et ta compréhension.

Table des matières

INTRODUCTION	11
1. L'ENTREPRISE VAN ROBAEYS FRERES	11
2. CONTEXTE DES TRAVAUX.....	12
CHAPITRE I ELEMENTS DE BIBLIOGRAPHIE	15
1. LE LIN, UNE PLANTE A FIBRES	16
2. COMPOSITION ET MORPHOLOGIE DU LIN ET DE SES FIBRES.....	17
2.1. Composition biochimique	17
2.1.1. Cellulose.....	18
2.1.2. Hémicelluloses	19
2.1.3. Pectines.....	19
2.1.4. Lignines	20
2.1.5. Eau.....	20
2.1.6. Organisation de la tige de lin et des faisceaux de fibres	20
2.1.7. Organisation d'une fibre élémentaire de lin.....	22
2.2. Masse volumique des fibres	24
3. PROPRIETES MECANQUES EN TRACTION DES FIBRES DE LIN	24
3.1. Comportement en traction.....	24
3.2. Propriétés mécaniques moyennes des fibres de lin.....	26
3.3. Paramètres influençant les propriétés mécaniques des fibres.....	28
3.3.1. Influence du diamètre des fibres	28
3.3.2. Influence de la zone de prélèvement	30
3.3.3. Influence de l'humidité	30
3.3.4. Défauts	31
4. LE LIN, DE LA GRAINE AUX FIBRES INDUSTRIELLES.....	33
4.1. Culture de la plante.....	33
4.2. Rouissage	35
4.2.1. Rouissage à l'eau	36
4.2.2. Rouissage au champ	37
4.2.3. Rouissage chimique et enzymatique	39
4.2.4. Autres méthodes de séparation des fibres de la tige.....	39
4.2.5. Conséquence du rouissage sur la structure et la composition de la plante...	39
4.2.6. Moyens d'évaluation du degré de rouissage	43
4.3. Extraction des fibres et préparation pour les différents débouchés.....	44
4.3.1. Eléments d'histoire du teillage de lin.....	45
4.3.2. Le teillage moderne	46
4.4. Fabrication de non-tissés de fibres végétales.....	55
4.5. Définition générale d'un non-tissé.....	56
4.6. Méthodes de production de non-tissé.....	57
4.6.1. Méthode d'obtention du voile	57
4.6.2. Technique de consolidation du voile.....	60

5. MATERIAUX COMPOSITES RENFORCES PAR DES FIBRES DE LIN.....	62
5.1. Définition générale d'un composite	62
5.2. Relation entre les propriétés des fibres de lin et les propriétés mécaniques des matériaux composites.....	63
CHAPITRE II METHODES EXPERIMENTALES.....	75
1. MOYENS DE CARACTERISATION DES FIBRES DE LIN	76
1.1. L'analyse thermogravimétrique (ATG)	76
1.2. Mesure de la couleur des fibres par spectrocolorimétrie.....	76
1.3. Mesure de la sorption d'eau des fibres	77
1.4. Extraction des fibres par des voies chimiques.....	78
1.5. Mesures des propriétés mécaniques des fibres unitaires par traction	78
2. METHODES DE MISE EN ŒUVRE DES COMPOSITES	79
2.1. Réalisation de composites PP/fibres courtes de lin par extrusion puis moulage par injection.....	79
2.2. Moulage de matériaux composites à renfort unidirectionnel Lin/ Epoxy	80
2.3. Mise en œuvre par thermocompression de composites à matrice thermoplastique renforcés par des non-tissés de lin	81
3. MICROSCOPIE ET IMAGERIE	82
3.1. Observations par microscopie optique	82
3.2. Observations par microscopie électronique à balayage.....	83
3.3. Outils d'analyse d'image	84
3.4. Micro-tomographie à rayons-X assistée par ordinateur (Micro CT)	85
4. MOYENS DE CARACTERISATION DES COMPOSITES	86
4.1. Evaluation de la fraction volumique de fibre.....	86
4.2. Analyse de la géométrie des fibres après transformation des composites injectés.	87
4.3. Détermination des propriétés mécaniques en traction.....	87
4.3.1. Matériaux injectés	87
4.3.2. Matériaux composites unidirectionnel (UD).....	87
4.3.3. Matériaux mis en œuvre par thermocompression	88
5. TEST STATISTIQUES.....	88
CHAPITRE III INFLUENCE DE L'ETAPE DE ROUISSAGE DU LIN SUR LES PROPRIETES MECANIQUES DES FIBRES ET SUR CELLES DE COMPOSITES INJECTES LIN/POLYPROPYLENE.....	91
1. MATERIAUX DE L'ETUDE	92
1.1. Sélection des fibres	92
1.2. Matrice utilisée	94
2. RESULTATS ET DISCUSSIONS.....	94
2.1. Evaluation du degré de rouissage	94
2.1.1. Evaluation de la couleur des fibres teillées	94
2.1.2. Observations de la surface des faisceaux par microscopie électronique à balayage	96
2.1.3. Extractions chimiques	97
2.1.4. Analyse thermogravimétrique (ATG)	99

2.1.5.	Mesure de la sorption d'eau des fibres en fonction de l'humidité relative .	101
2.1.6.	Etat de division des faisceaux	102
2.2.	Propriétés mécaniques en traction des fibres unitaires.....	104
2.2.1.	Evolution du diamètre des fibres.....	104
2.2.2.	Evolution des propriétés mécaniques des fibres	105
2.3.	Propriétés des matériaux composites	107
2.3.1.	Microstructure	107
2.4.	Propriétés en traction des matériaux composites PP /Lin injectés.....	115
2.5.	Comparaison de la rigidité mesurée avec celle obtenue par un modèle micromécanique.....	119
2.6.	Influence d'un traitement à l'eau des fibres sur les propriétés mécaniques de matériaux injectés Lin/PP	122
2.6.1.	Matériaux	122
2.6.2.	Analyse thermogravimétrique	122
2.6.3.	Propriétés mécaniques des composites injectés	124
3.	BILAN DU CHAPITRE III	126
CHAPITRE IV COMPARAISON DES PROPRIETES DE FIBRES DE LIN PROVENANT DE FILASSE ET D'ETOUPES		129
1.	MATERIAUX UTILISES	130
1.1.	Sélection des fibres	130
1.2.	Matrice utilisée	133
1.3.	Réalisation des matériaux composites.....	133
2.	RESULTATS ET DISCUSSIONS	133
2.1.	Etude de l'aspect et de la morphologie des deux produits.....	133
2.2.	Propriétés mécaniques en traction des fibres unitaires.....	140
2.3.	Propriétés des composites à renfort unidirectionnel Lin Epoxy	143
2.3.1.	Etude de la morphologie des renforts au sein des éprouvettes.....	143
2.3.2.	Propriétés mécaniques en traction de composites à renfort unidirectionnel.....	150
3.	BILAN DU CHAPITRE IV	159
CHAPITRE V ETUDE DE COMPOSITES A MATRICE THERMOPLASTIQUE RENFORCES PAR DES NON-TISSES DE LIN		161
1.	MATERIAUX DE L'ETUDE.....	162
1.1.	Processus de fabrication des non-tissés de lin.....	162
1.1.1.	Non-tissé hydrolié	162
1.1.2.	Non-tissé aiguilleté.....	163
1.1.3.	Mat réalisés par voie papetière.....	164
1.2.	Matériaux utilisés pour Etude A	165
1.3.	Matériaux utilisés pour Etude B.....	166
2.	ETUDE A : COMPOSITES A MATRICES PLA RENFORCES PAR DES RENFORT HYDROLIES EN LIN ET LIN/VISCOSE.....	167
2.1.	Observation de la microstructure des renforts et des composites	168
2.2.	Comparaison des propriétés mécaniques en traction des composites réalisés à partir des deux types de renforts hydroliés.....	169

2.3. Bilan de l'étude A	173
3. ETUDE B : EVALUATION DU POTENTIEL DE TROIS RENFORTS NON TISSES DE LIN : HYDROLIE, AIGUILLETE, MAT PAPETIER	174
3.1. Etude de la structure des renforts non tissés	174
3.2. Influence des processus de fabrication des non-tissés sur les propriétés des fibres élémentaires.....	178
3.3. Influence de l'ajout d'un agent couplant PPgMA à la matrice PP sur les propriétés mécaniques des composites.....	180
3.4. Influence de l'architecture du renfort non-tissé sur les propriétés des composites.....	183
3.4.1. Observation de la microstructure des composites	183
3.4.2. Propriétés mécaniques en traction des matériaux composites en fonction des processus de fabrication des préformes.....	185
3.4.3. Comparaison de la rigidité expérimentale des matériaux avec celle prédite par un modèle micromécanique.	198
3.5. Bilan de l'étude B	201
CHAPITRE VI CONNAISSANCES DES PROPRIETES MECANIQUES DES FIBRES DE LIN PRODUITES PAR L'ENTREPRISE VAN ROBAEYS FRERES	203
1. CHOIX DES VARIETES DE LIN PAR TERROIR	205
2. ETUDE DES PROPRIETES MECANIQUES MOYENNES DES FIBRES DE LIN PRODUITES PAR VAN ROBAEYS FRERES.	210
2.1. Etude de la variabilité des propriétés mécaniques de fibres de lin	210
2.1.1. Propriétés mécaniques moyennes.....	210
2.1.2. Analyse d'un lot particulier	213
2.1.3. Comparaison des propriétés obtenues avec les données de la littérature ...	216
2.2. Corrélation entre les propriétés mécaniques des composites et celles des fibres unitaires de lin.....	217
2.2.1. Composites unidirectionnels (UD) lin/époxy.....	217
2.2.1. Composites injectés Lin/PP	219
3. BILAN DU CHAPITRE VI	221
CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	223
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	229
ANNEXE A.....	241

Liste des figures

Figure 1 Activités de l'entreprise Van Robaeys Frères.	12
Figure 2 Répartition de la production mondiale de fibres végétales hors coton et bois 2001-2008 (ADEME/FRD, 2011).	16
Figure 3 Représentation schématique du lin, de la tige jusqu'au fibrilles de cellulose (Bos et al., 2006).	17
Figure 4 Représentation de la cellulose en conformation chaise.	18
Figure 5 Vues en coupe de tige de lin par microscopie optique. (a) Adapté de (Gorshkova et al., 2012). (b) E: Epiderme P: Parenchyme cortical. Fb: Faisceaux de fibres. X: Xylème. Adapté de Morvan et al. (2003).	21
Figure 6 (a) Vue en coupe d'un faisceau de fibres (Bourmaud, 2011). (b) Schéma de principe d'une section de faisceau de fibres de lin (Baley, 2002). (c) Schéma de principe de l'organisation longitudinale d'un faisceau de fibres (Baley, 2002).	21
Figure 7 Vues en coupe de jonction entre 3 fibres de lin par microscopie électronique en transmission (a) S: paroi secondaire. Flèche: Lumen. Double flèche: Lamelle mitoyenne. Adapté de (Akin et al., 1996). (b) PCW: paroi primaire. SCW: paroi secondaire. Cj: jonction tricellulaire. Adapté de (Morvan et al., 2003).	22
Figure 8 (a) Représentation schématique de la structure possible d'une fibre de lin et de l'agencement des microfibrilles de cellulose dans la matrice de polysaccharides amorphes au sein de la couche S2 (Lefevre et al., 2013) (b) Organisation simplifiée des constituants de la paroi secondaire (Charlet et al., 2009).	23
Figure 9 (a) Courbe force-déplacement typique lors de la traction d'une fibre unitaire de lin. (b) Faciès de rupture d'une fibre de lin en traction (Baley, 2002).	25
Figure 10 Trois types de courbes contrainte/déformation obtenues pour les fibres de lin (Lefevre et al., 2014a).	26
Figure 11 Contrainte à rupture en traction en fonction du module d'Young pour 50 lots de fibres de lin (Baley et Bourmaud, 2014).	27
Figure 12 Evolution du module d'Young (a), de la contrainte à rupture (b) et de la déformation à rupture (c) de fibres unitaires de lin en fonction de leur position dans la tige et de leur diamètre	28
Figure 13 Evolution de la valeur de diamètre le long de la fibre (Charlet et al., 2010a).	29
Figure 14 (a) Exemple de défauts observé au MEB (Baley, 2002) (b) Kink bands sur une fibre élémentaire de lin observé par microscopie optique en lumière polarisée (haut) et non polarisée (bas), diamètre de fibres ca. 23µm (Andersons et al., 2009a).	31
Figure 15 Observation meb in-situ lors d'un essai de traction d'une fibre unitaire. Initiation de fissures au niveau d'un kink band (Baley, 2004).	32
Figure 16 Culture du lin textile en France. Part des terres arables consacrée au lin en 2005.(AGPL/CIPALIN, 2005).	33
Figure 17 Champ de lin cultivé sur la commune de Bambecque (Nord) en 2012. (a) Champ versé suite à un orage. (b) Champ en partie relevé 10 jours plus tard.	34
Figure 18 Photographie de lin. (a) A la levée, plante au stade cotylédon. (b) Floraison du lin.	35
Figure 19 Observations au MEB de tiges de lin verte (a) et de tige de lin roui par voie enzymatique. Adapté de (Akin et al., 2001).	36
Figure 20 Andains de lin en cours de rouissage au champ. (a) Lin vert après l'arrachage. (b) Lin en fin de rouissage.	38
Figure 21 Illustration de la division des faisceaux avant et après rouissage et teillage (Kessler et al., 1998).	42
Figure 22 Evolution de la sorption d'eau de fibres de lin en fonction de l'humidité relative (a) (Alix et al., 2012) (b) (Alix et al., 2012) (Stamboulis et al., 2001).	43
Figure 23 Photographie d'un maillet et d'une broie à main (a) et d'un moulin flamand (b).	45
Figure 24 Système de broyage à rouleaux cannelés (a) et système de battage (b).	48
Figure 25 Schéma d'une ligne de teillage (Adapté d'un document Depoortere). Produits et coproduits issus de la décortication des pailles de lin (Bert, 2013).	49
Figure 26 Schéma d'organisation de la seconde transformation du lin.	51
Figure 27 Images en lumière polarisée de deux types de lin: lin vert (haut) et après rouissage, teillage, cardage et affinage (bas). Les défauts sont visibles grâce aux lignes claires et sombres qui traversent les fibres (Hänninen et al., 2012).	55
Figure 28 Segmentation en volume des marchés applicatifs du non-tissé (Payen, 2013).	57
Figure 29 Schéma de principe du cardage. Vue en coupe. Adapté d'un document commercial DILO SPINNBAU GmbH	58
Figure 30 Schéma de principe du procédé <i>wetlaid</i> (Payen, 2013).	59
Figure 31 Schéma d'une aiguilleuse (a) et d'un étaleur-nappeur (b) (Payen, 2013).	60
Figure 32 Pointe d'une aiguille d'aiguilletage (Coste, 2014).	61
Figure 33 Schéma de principe de l'hydrolage. Document Norafin GmbH.	61

Figure 34 Propriétés en traction de composites à renfort UD de en fonction des propriétés mécaniques des fibres (Charlet et al., 2007).	64
Figure 35 Influence de la nature de la fibre de renfort sur le renforcement du PP (30 % en masse). Thèse de doctorat(Coroller, 2013).	65
Figure 36 Couche de transcrystallinité observé pour le système lin/PP après 10 minutes à 138°C. (Garkhail et al., 2009)	67
Figure 37 Mécanismes de réaction chimique entre une fibre végétale et un polymère PPgMA (Park et al., 2006).	68
Figure 38 Influence du taux de PPgMA sur les propriétés mécaniques de composites PP/lin 30 % m. Adapté de (Arbelaiz et al., 2005b).	69
Figure 39 Distribution des surfaces des renforts présents dans la section des composites : Verre (■), Hermès (◆), Andrea (●) et Marilyn (▲) (Coroller et al., 2013).	70
Figure 40 Effet du nombre d'extrusion avant injection sur le module d'Young de composites lin/PP (Ausias et al., 2013)	71
Figure 41 (a) Evolution de la contrainte à rupture des composites en fonction du rapport d'aspect des renforts, pour deux taux de remplissage et pour un même profil de vis. (b) Evolution de la contrainte à rupture des composites en fonction du rapport d'aspect des renforts pour deux profil de vis.	72
Figure 42 Augmentation de la surface spécifique des fibres pour un même rapport d'aspect. Adapté de Le Duc (2013).	72
Figure 43 (a) Diagramme de chromaticité a^* , b^* (b) Représentation du solide des couleurs pour l'espace colorimétrique $L^*a^*b^*$.	77
Figure 44 Schéma de principe du moulage des matériaux composites.	80
Figure 45 Cycle de mise en œuvre par thermocompression d'un empilement renfort/matrice.	82
Figure 46 Vue en coupe de faisceaux de fibres de lin observés au microscope optique. Barre d'échelle:10µm.	83
Figure 47 Etapes de l'analyse d'image avec ImageJ. a) Image MEB brute. b) Image binaire après seuillage. c) Détection de chaque objet présent sur l'image.	84
Figure 48 Précipitations, température moyenne quotidienne au cours de la période de rouissage et dates de collecte des échantillons.	93
Figure 49. Photographie des fibres brutes. Des fibres les moins rouies à gauche vers les fibres les plus rouies à droite. La barre d'échelle représente environ 10 cm	95
Figure 50 Image MEB des échantillons R1 (A) et (B), R3 (C) et (D), et R6 (E) et (F). Le grossissement est x500 sur la colonne de gauche et x2000 sur la colonne de droite.	97
Figure 51 Analyse thermogravimétrique des échantillons. a) Perte de masse en fonction de la température. b) Dérivée de la masse en fonction de la température (vitesse de dégradation).	100
Figure 52 Evolution du contenu en eau des fibres en fonction de l'humidité relative.	101
Figure 53 Vue en coupe de faisceaux de fibres de lin de trois échantillons des lots R1, R3 et R6. (a) Image MEB brute. (b) Image binaire après un seuillage noir et blanc.	103
Figure 54 (a) Schéma de principe de l'éprouvette de traction mettant en évidence les zones d'observation au MEB de la zone peau et cœur. (b) Schéma de l'orientation des fibres dans la peau et le cœur dans une éprouvette de traction, adapté de Bourmaud et al. (2013a).	109
Figure 55 : Vue en coupe des éprouvettes injectée mettant en évidence les zones peau et cœur. Les observations sont effectuées comme indiqué sur la figure 6.	111
Figure 56 Vue de la zone peau et de la zone cœur d'une éprouvette R1, extraites des analyses par tomographie.	112
Figure 57 Vue de la zone peau et de la zone cœur d'une éprouvette R3, extraites des analyses par tomographie.	113
Figure 58 Vue de la zone peau et de la zone cœur d'une éprouvette R6, extraites des analyses par tomographie.	113
Figure 59 Vue en 3 dimensions des 3 échantillons PP/Lin extraite des analyses par microtomographie à Rayons-X. Les vides présents dans la matière sont mis en évidence. De la gauche vers la droite : R1, R3 et R6. Les pores les plus petits sont en bleu, les pores les plus grands sont en rouge (0,02 to 0,18 mm ³).	114
Figure 60 Courbe de comportement en traction pour les éprouvettes injectées lin/PP.	115
Figure 61 Faciès de rupture de l'éprouvette R1. Coexistence de deux zones, à gauche plus fragile et à droite plus ductile.	116
Figure 62 Faciès de rupture de l'éprouvette R1. (a) zone "ductile", (b) zone "fragile".	116
Figure 63 Faciès de rupture de l'éprouvette R6. (a) zone "ductile", (b) zone "fragile".	117
Figure 64 Propriétés mécaniques en traction des matériaux injectés renforcés par les fibres de R1 à R6. Module d'Young et contrainte maximum.	117
Figure 65 Propriétés mécaniques en traction des matériaux injectés renforcés par les fibres de R1 à R6. Déformation à rupture.	118

Figure 66 Analyse thermogravimétrique des échantillons R1 et R1Eau.....	123
Figure 67 Analyse thermogravimétrique des échantillons R4 et R4Eau.....	124
Figure 68 Analyse thermogravimétrique des échantillons R6 et R6Eau.....	124
Figure 69 Propriétés mécaniques en traction des matériaux injectés renforcés par les fibres R1, R4 et R6 ainsi que ces mêmes lots traités à l'eau. Module d'Young et contrainte maximale.....	125
Figure 70 Propriétés mécaniques en traction des matériaux injectés renforcés par les fibres R1, R4 et R6 ainsi que ces mêmes lots traités à l'eau. Déformation à rupture.....	125
Figure 71 Schéma de la ligne de teillage utilisée dans cette étude. L'axe x représente la direction de la ligne. .	131
Figure 72 Photographie de la filasse (A), des étoupes brutes (B) et des étoupes démêlée et alignées (C).....	132
Figure 73 Répartition des longueurs de mèche pour la filasse et les étoupes.....	134
Figure 74 Observation MEB de faisceaux de filasse (A), de faisceaux d'étoupes (B), de fibres unitaires de filasse (C) de fibres unitaires d'étoupes (D)	135
Figure 75 Vue en coupe de faisceaux de fibres de lin. a) Image MEB brute. b) Image binaire après un seuillage noir et blanc.....	136
Figure 76 Représentation schématique d'un faisceau de fibres. Observation de la section transverse du même faisceau selon deux plans d'observations.	137
Figure 77 Fréquence cumulée tracée en fonction de l'aire des renforts, pour la filasse et les étoupes, dans la gamme $20 \mu\text{m}^2$ à $20000 \mu\text{m}^2$. Il est important de noter que l'échelle utilisée en ordonnée est volontairement non linéaire.....	138
Figure 78 Fréquence cumulée tracée en fonction de l'aire des renforts, pour la filasse et les étoupes. Zoom dans la gamme $20 \mu\text{m}^2$ à $1000 \mu\text{m}^2$	139
Figure 79 Comparaison entre la distribution des diamètres de fibres unitaires $\varnothing_{\text{traction}}$ et \varnothing_{lot} pour la filasse....	141
Figure 80 Comparaison entre la distribution des diamètres $\varnothing_{\text{traction}}$ et \varnothing_{lot} pour les étoupes	141
Figure 81 Schéma simplifié d'une éprouvette de traction mettant en évidence le volume analysé par microtomographie. Le repère (x,y,z) sera utilisé par la suite.....	144
Figure 82 Vue en 3 dimensions des 4 éprouvettes Lin/Epoxy à renfort unidirectionnel réalisée à partir des analyses par microtomographie à Rayons-X. Les vides présents dans la matière sont mis en évidence. L'échelle sur la gauche permet d'associer une couleur à chaque gamme de taille de pores. Le repère (x,y,z) est défini Figure 81.....	144
Figure 83 Vue sur une cavité de forme allongée selon 3 directions.....	145
Figure 84 a) Vue en coupe de l'éprouvette 1. b) Image binaire mettant en évidence la fraction apparente de renforts en noir. $V_f=0,67$	147
Figure 85 a) Vue en coupe de l'éprouvette 2. b) Image binaire mettant en évidence la fraction apparente de renforts en noir. $V_f=0,65$	147
Figure 86 a) Vue en coupe de l'éprouvette 3. b) Image binaire mettant en évidence la fraction apparente de renforts en noir. $V_f=0,27$	148
Figure 87 a) Vue en coupe de l'éprouvette 4. b) Image binaire mettant en évidence la fraction apparente de renforts en noir. $V_f=0,24$	148
Figure 88 Comportement en traction longitudinale d'une éprouvette de composite à renfort UD de lin (étoupes) et d'une éprouvette de composite à renfort UD de verre E.....	151
Figure 89 Comportement en traction longitudinale d'une éprouvette de composite à renfort UD de lin, d'une fibre unitaire de lin, ainsi que d'un faisceau.....	152
Figure 90 Module de traction longitudinal des composites à renforts UD en fonction de la fraction volumique de fibres. Chaque point représente une éprouvette.	154
Figure 91 Comparaison des rigidités des composites à renforts UD pour deux gammes de déformation, en fonction de la fraction volumique de fibres. Chaque point représente une éprouvette. Les données sont présentées pour la filasse.	156
Figure 92 Contrainte à rupture en traction longitudinale des composites à renforts UD en fonction de la fraction volumique de fibres. Chaque point représente une éprouvette.....	157
Figure 93 Déformation à rupture en traction longitudinale des composites à renforts UD en fonction de la fraction volumique de fibres. Chaque point représente une éprouvette.	158
Figure 94 Evolution du facteur k en fonction de la fraction volumique de fibres pour chaque éprouvette.....	159
Figure 95 Définition des deux directions MD et CD par rapport au rouleau de non-tissé.....	162
Figure 96 Schéma de principe de la ligne d'hydroliage utilisée. Adapté d'un document Norafin.	163
Figure 97 Schéma de principe de la ligne d'aiguilletage utilisée. Adapté d'un document du CENT.....	164
Figure 98 Exemple de ligne de production par voie humide (EDANA, 2014).	165
Figure 99 Vue en coupe de fibres de viscose mettant en évidence la forme nuageuse de leurs sections. Barre d'échelle : $15 \mu\text{m}$. (Photo : Lenzing).....	166
Figure 100 Observations MEB des deux renforts hydroliés. a) 130 g.m^{-2} Lin/Viscose 65/35. b) 150 g.m^{-2} Lin.....	168

Figure 101 Observation MEB d'une coupe de matériaux composites dans la direction MD du renfort. a) et c) 100% Lin. b) et d) Lin Viscose 65/35. Les flèches blanches indiquent les fibres de viscose.	169
Figure 102 Courbe de comportement en traction de la matrice PLA et des composites Lin/Viscose/PLA et Lin/PLA dans les directions MD et CD des renforts	170
Figure 103 Faciès de rupture des composites Lin/PLA et Lin/Viscose/PLA sollicités en traction dans le sens longitudinal	171
Figure 104 Observations par MEB de la surface des non-tissés. A et B : aiguilleté, C et D : hydrolié,	175
Figure 105 Reconstitution 3D des renforts à partir des données de tomographie. A et B : aiguilleté, C et D : hydrolié, E et F : Mat. Les échelles indiquées correspondent à chaque colonne. Les flèches rouges indiquent les trous provoqués par la technique d'hydroliage.	176
Figure 106 Observations au MEB de la tranche des non-tissés dans la direction MD. A et B : Aiguilleté, C et D : Hydrolié, E et F : Mat.	178
Figure 107 Influence de l'ajout de PPgMA à la matrice PP sur les courbes de comportement en traction des composites à renforts hydroliés sollicités dans la direction MD. A : matrice PP, B : matrice PP+PPgMA.	180
Figure 108 Influence de l'ajout de PPgMA à la matrice PP sur les propriétés mécaniques en traction des composites à renforts hydroliés sollicités dans la direction MD en fonction de la fraction volumique de fibres. A : Module d'Young, B : Contrainte maximale, C : Déformation à rupture.	181
Figure 109 Observation par MEB de faciès de rupture en traction dans la direction MD de composites à matrice PP à renfort hydrolié. A et B : Avec agent couplant PPgMA (4%). C et D : Sans agent couplant. $V_f=28,6\%$	182
Figure 110 Observation MEB des composites dans la direction MD pour les trois renforts. $V_f=28,6$	184
Figure 111 Courbes de comportement en traction des composites à renforts aiguilletés, hydroliés et mat, sollicités dans le sens machine MD.....	186
Figure 112 Observation par MEB de faciès de rupture en traction dans la direction MD de composites à matrice PP/PPgMA. A et B : Hydroliés, C et D : Aiguilleté. E et F : Mat. $V_f=28,6\%$. Les éprouvettes sont placées suivant un angle de 45° par rapport à l'axe d'observation.	187
Figure 113 Faciès de rupture du composite à renfort aiguilleté. Zoom sur une fibre unitaire.	188
Figure 114 Propriétés mécaniques en traction des composites sollicités dans la direction MD. Comparaison entre le renfort aiguilleté, hydrolié et le mat.	190
Figure 115 Courbes de comportement en traction des composites à renforts aiguilletés, hydroliés et mat, sollicités dans la direction CD des renforts.	191
Figure 116 Propriétés mécaniques en traction des composites sollicités dans la direction CD. Comparaison entre le renfort aiguilleté, hydrolié et le mat.	193
Figure 117 Evolution de l'anisotropie des propriétés mécaniques en traction.....	196
Figure 118 Comparaison entre les valeurs expérimentales et théoriques du module d'Young des matériaux en fonction de la fraction volumique de fibres.....	200
Figure 119 Situation géographique des terroirs de culture de lin dans lesquels s'approvisionne l'entreprise Van Robaeys Frères.	204
Figure 120 Proportion de surface semées par variété pour la totalité des terroirs, de 2009 à 2013.	206
Figure 121 Proportion de variétés cultivées dans la Somme.....	207
Figure 122 Module d'Young moyen en traction des lots de fibres étudiés.....	211
Figure 123 Contrainte à rupture moyenne en traction des lots de fibres étudiés.....	212
Figure 124 Allongement à rupture moyen en traction des lots de fibres étudiés.....	212
Figure 125 Module d'Young et contrainte à rupture des fibres en fonction de leur diamètre pour les dix lots étudiés.	213
Figure 126 Observations par microscopie optique de coupe transverse de faisceaux de fibres. (a) V334 Drakkar Vexin 2012 (b) Drakkar Oise 2009. Le grossissement est le même pour les deux photos.....	214
Figure 127 Contrainte à rupture moyenne et déformation à rupture moyenne en fonction du module d'Young pour les lots de l'étude, ainsi que ceux de l'étude de Baley et Bourmaud (2014) et de Lefeuvre et al. (2014). Les traits en pointillés représentent les valeurs moyennes.....	216
Figure 128 Relations entre les propriétés mécaniques de composites PP/lin 30% en masse et celles des fibres pour 4 lots de lin.....	220

Liste des tableaux

Tableau 1 Proportions de constituants des fibres de lin trouvés dans la littérature.	18
Tableau 2 Comparaison des propriétés mécaniques en traction de fibres unitaires provenant de différents lots de fibres de lin.	26
Tableau 3 Rendement en produit et coproduits issus du teillage de la paille de lin.	52
Tableau 4 Relation entre les propriétés mécaniques de composites UD et celles des différents lots de fibres de lin utilisés. Adapté de (Coroller et al., 2013).	65
Tableau 5 Valeurs de contrainte de cisaillement à l'interface fibre/matrice pour des systèmes lin/PP et lin/PPgMA.	68
Tableau 6 Conditions expérimentales des extractions.	78
Tableau 7 Identification des échantillons prélevés et durées de rouissage correspondante.	92
Tableau 8. Coordonnées colorimétriques CIEL *a*b* en fonction du temps de rouissage. s.u : sans unité.	95
Tableau 9 Quantité de matière perdue après les différentes extractions	98
Tableau 10 Résultats de l'analyse thermogravimétrique. Perte de masse et température de dégradation correspondante. Trois mesures sont réalisées par échantillon.	100
Tableau 11 Résultats des analyses de coupes transversales de faisceaux de fibre de lin issus des lots R1, R3 et R6. Les valeurs entre parenthèses sont le minimum et le maximum.	104
Tableau 12 Propriétés mécaniques des fibres unitaires pour les trois degrés de rouissage.	105
Tableau 13 Comparaison entre les propriétés mécaniques des fibres unitaires pour R1, R3 et R6 et les propriétés mécaniques de fibres unitaires de lin roui au champ retrouvées dans la littérature. Les essais sont réalisés avec un protocole identique, sur la même machine, avec les mêmes conditions environnementales.	106
Tableau 14 Dimensions initiales des fibres brutes puis après compoundage et après injection	108
Tableau 15 Rigidité en traction mesurée et prédite par le modèle pour les composites injectés.	121
Tableau 16 Résultats de l'analyse thermogravimétrique. Comparaison entre les fibres vierges et les fibres traitées à l'eau. Perte de masse et température de dégradation correspondante.	122
Tableau 17 Proportions moyennes de produit et coproduits obtenus après teillage. Chiffres issus de la littérature (Bert, 2013).	132
Tableau 18 Longueur des mèches de filasse et d'étoupes.	133
Tableau 19 Perte de masse après extraction chimique de faisceaux de fibres.	135
Tableau 20 Résultats des analyses de coupe transversales de faisceaux de fibres de lin issus de filasse et d'étoupes. Les valeurs entre parenthèses sont le minimum et le maximum.	137
Tableau 21 Propriétés en traction des fibres unitaires.	141
Tableau 22 Descriptif des éprouvettes utilisées pour l'étude.	143
Tableau 23 Analyse de la porosité des éprouvettes par microtomographie.	146
Tableau 24 Fraction de fibres contenue dans les éprouvettes évaluée par analyse d'image sur une surface polie d'éprouvette et par mesure de masse volumique sur un échantillon.	149
Tableau 25 Propriétés mécaniques moyennes mesurées par essai de traction sur les matériaux composites lin/époxy unidirectionnel réalisés avec la filasse et les étoupes de lin. Comparaison avec les propriétés des matériaux composites unidirectionnel verre/époxy mis en œuvre avec la même méthode de moulage.	153
Tableau 26 Comparaison des rigidités moyennes des composites à renforts UD pour deux gammes de déformation et comparaison des rigidités expérimentales avec des valeurs générées par la loi des mélanges.	155
Tableau 27 Propriétés mécaniques en traction des composites Lin / PLA et Lin Viscose / PLA	172
Tableau 28 Propriétés en traction de composites Lin/PLA issues de la littérature. Mise en œuvre par thermocompression.	173
Tableau 29 Morphologie des fibres des trois non-tissés	175
Tableau 30 Propriétés moyennes en traction des fibres unitaires de lin. N : nombre de fibres de l'échantillon. Comparaison avec les propriétés moyennes rapportées par (Baley et Bourmaud, 2014).	179
Tableau 31 Résultats de l'analyse d'image réalisée à partir de vue en coupe des matériaux dans la direction MD des renforts.	185
Tableau 32 Propriétés mécaniques en traction des composites pour la direction MD des renforts.	189
Tableau 33 Propriétés mécaniques en traction des composites pour la direction CD des renforts.	192
Tableau 34 Propriétés mécaniques en traction de composites à matrice PP renforcés par des non-tissés de lin issues de la littérature.	194
Tableau 35 Ratios R pour le Module d'Young, la contrainte maximale et la déformation à rupture des matériaux à renforts non tissés. Les données entre parenthèses correspondent aux valeurs maximales et minimales.	196
Tableau 36 Valeurs expérimentales et théoriques du module d'Young des matériaux. Les valeurs de module d'Young dans la direction CD, MD ainsi que la moyenne des deux directions sont reportées. Les valeurs entre parenthèses correspondent à l'écart par rapport aux valeurs estimées par les modèles micromécaniques.	199
Tableau 37 Variétés de lin textile disponible pour la culture en France en 2013. (Bert et al., 2014).	203

Tableau 38 Surface moyenne emblavée par terroir durant les années 2009-2013	205
Tableau 39 Variétés cultivées entre 2009 et 2013 pour Van Robaeys et années d'inscription au catalogue officiel	206
Tableau 40 Propriétés mécaniques en traction des fibres unitaires des lots étudiés. n: nombre de fibres testées. *:Lot étudié par (Bourmaud et al., 2010).	210
Tableau 41 Propriétés mécaniques de composites UD époxy/lin V334 mesurées (E^{exp}) et estimées par la loi des mélanges ($E^{estimé}$), en fonction de la fraction volumique de fibres. Les valeurs entre parenthèses expriment les coefficients de variation (CoV).	218
Tableau 42 Estimation de la rigidité des fibres unitaires à partir de la rigidité des matériaux composites UD. .	219
Tableau 43 Propriétés mécaniques en traction des éprouvettes injectées PP/lin. Les valeurs entre parenthèses expriment les coefficients de variation (CoV).	220

INTRODUCTION

Les travaux de thèse présentés dans ce manuscrit ont été menés dans le cadre d'une thèse de doctorat CIFRE entre l'entreprise Van Robaeys Frères, l'Université de Bretagne-Sud et le Centre de Bretagne de l'Ifremer.

1. L'ENTREPRISE VAN ROBAEYS FRERES

L'entreprise de teillage de lin Van Robaeys Frères a été fondée en 1928 et appartient toujours aujourd'hui à la famille Van Robaeys. Deux sites de production sont situés dans le département du Nord (59). Le site historique et siège social est basé à Killem, au cœur de la Flandre française. L'activité principale de Van Robaeys Frères est le teillage du lin, c'est-à-dire l'extraction des fibres de la paille de lin. Cette activité permet de produire des fibres longues (la filasse) et un ensemble de coproduits : des fibres plus courtes (les étoupes), du bois de lin (anas), des graines et des poussières. L'entreprise valorise l'ensemble de ces coproduits.

La société transforme 8% de la sole française de lin (3500 à 6000 hectares de lin) avec un chiffre d'affaires généré de 15 M€ pour 76 salariés en 2009. L'entreprise s'implique dans la totalité de la filière lin de l'amont à l'aval en intervenant dans les différentes étapes : choix des semences, suivi de la culture, travaux de récolte, suivi du rouissage et extraction des fibres dans ses sites de production (Figure 1).

Van Robaeys Frères s'approvisionne en paille de lin auprès de producteurs contractualisés, l'entreprise peut réaliser les travaux de récoltes, arrachage, retournage, ramassage et le transport jusqu'aux sites de production. La part des travaux effectuée par l'entreprise est établie au cas par cas avec l'agriculteur. Une des spécificités de l'entreprise est l'approvisionnement en paille de lin dans plusieurs terroirs liniers Français. En effet, les responsables de cultures de l'entreprise travaillent en partenariat étroit avec les liniculteurs du Nord, du Pas-de-Calais, de la Somme, de l'Oise, de l'Eure et de la Seine Maritime. De ce fait, Van Robaeys Frères est capable de s'approvisionner en un grand nombre de variétés de lin différentes, choisies en fonction des caractéristiques de chaque terroir.

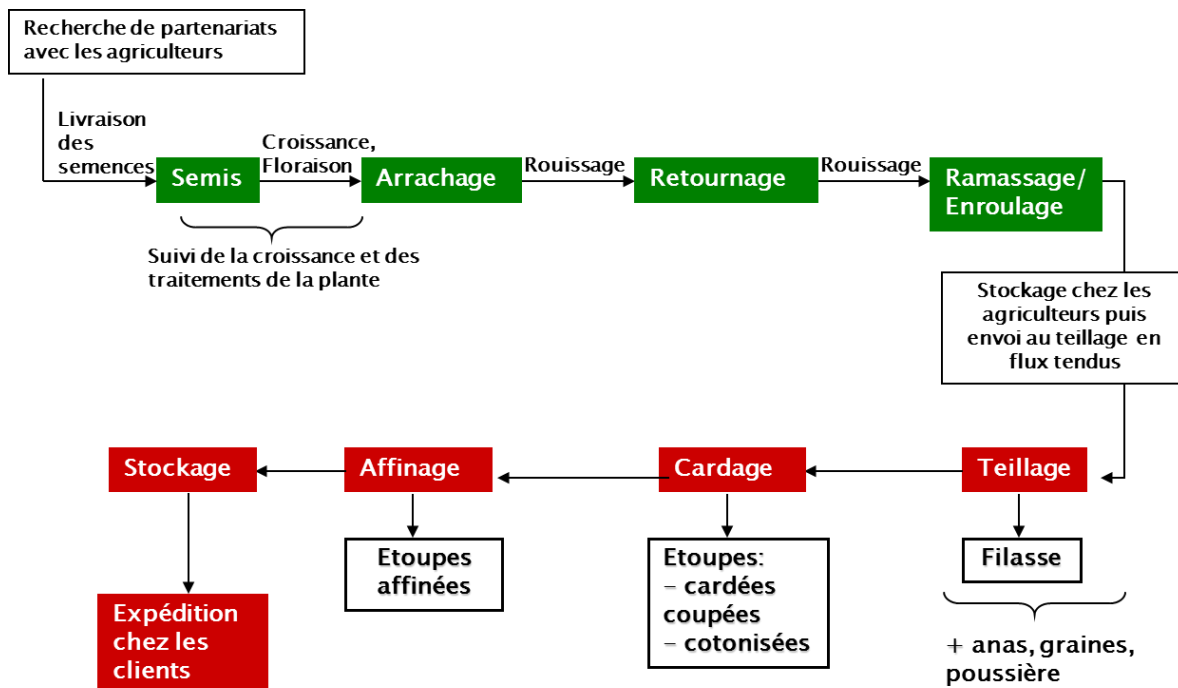


Figure 1 Activités de l'entreprise Van Robaeys Frères.

Les pailles de lin sont ensuite traitées mécaniquement afin d'extraire les fibres. L'entreprise dispose également d'unités de coupe, de cardage et d'affinage et peut ainsi proposer plusieurs types de présentation des fibres issues de la filasse et des étoupes (Figure 1). Les débouchés majeurs actuels sont le textile, la corderie, le papier, l'automobile (composites) et l'isolation.

2. CONTEXTE DES TRAVAUX

Aujourd'hui l'essentiel des ventes de l'entreprise Van Robaeys Frère est relié aux débouchés traditionnels textiles. En effet, 80 % de la production de Van Robaeys Frères est exportée en Asie pour être peignée, filée et transformée en produit textile. Ce schéma commercial présente un risque important pour les ventes en cas de diminution de la demande. Pour endiguer ce risque, la diversification des marchés et des clients potentiels est cruciale, afin d'assurer la pérennité de l'entreprise. Dans ce but, l'entreprise a choisi d'axer une partie de son effort de recherche et développement sur les renforts de composites en fibres de lin.

Les plantes à fibres sont utilisées depuis des millénaires dans la vie de tous les jours (vêtements, linge) ou pour des applications plus techniques (isolation, cordages, voiles).

Celles-ci ont été remplacées massivement au cours de l'industrialisation des pays développés, notamment avec l'avènement des fibres synthétiques fabriquées à partir de ressources fossiles.

La nécessité d'un développement soutenable et les prévisions de la fin d'un pétrole disponible pour un coût financier et environnemental acceptable, ont entraîné un retour à l'utilisation de la biomasse pour la réalisation de matériaux. Parmi ces derniers, les matériaux composites renforcés par des fibres végétales se développent et ont fait l'objet de nombreuses publications scientifiques ces vingt dernières années. En effet, les fibres de lin possèdent des propriétés mécaniques spécifiques équivalentes aux fibres de verre et sont renouvelables. Elles sont également biodégradables. Par ailleurs, elles sont disponibles en Europe et elles permettent une réduction des impacts environnementaux.

Ce type de renfort a des atouts, mais les industriels de la plasturgie disent manquer de connaissances sur les performances des fibres végétales et des biocomposites. Par ailleurs, compte tenu de l'usage d'une ressource renouvelable, ils s'interrogent sur la reproductibilité et la dispersion des performances d'une année sur l'autre.

Il y a évidemment d'autres verrous, comme l'odeur émise par certaines pièces lorsque le procédé de transformation est mal maîtrisé, la tenue au feu, la température maximale d'usage (souvent conditionnée par la matrice), la tenue en fatigue et le vieillissement en milieu humide.

On remarque que pour des applications composites, il n'existe pas aujourd'hui de cahier des charges précisant les performances et la présentation nécessaires des fibres de lin.

Pour favoriser l'usage des fibres de lin comme renfort de matériaux composites, Van Robaeys doit répondre aux attentes des donneurs d'ordre et fabricants de semi-produits. Ceci impose une connaissance approfondie des propriétés des fibres produites par l'entreprise et les paramètres les influençant. Il est aussi nécessaire de connaître les relations entre les propriétés des fibres et celles des composites.

Pour répondre à ces questions, ce manuscrit présente des travaux subdivisés en six chapitres:

Le chapitre I donne quelques éléments de bibliographie sur le lin, ses fibres et les composites renforcés par des fibres de lin. Les points abordés ont trait à la culture du lin, à l'extraction des fibres et à leur morphologie. Les paramètres influençant les propriétés mécaniques des fibres et celles des composites sont également développés.

Le chapitre II présente les méthodes d'essais et de mises en œuvre utilisées pour la réalisation des travaux présentés dans la suite du manuscrit.

Le chapitre III aborde l'influence du degré de rouissage du lin sur les propriétés mécaniques des fibres et celles de composites injectés PP/lin.

Le chapitre IV compare les propriétés de fibres de lin provenant de filasse et d'étoupes. Les propriétés mécaniques de matériaux composites à matrice époxy et renfort unidirectionnel de lin sont comparées pour les deux types de fibres.

Le chapitre V permet d'étudier les performances mécaniques de composites à matrice thermoplastique renforcés par des non-tissés de lin. L'influence de la structure et de la morphologie du non-tissé sur les propriétés mécaniques en traction des composites sont étudiés.

Le chapitre VI a pour but d'approfondir la connaissance des propriétés mécaniques des fibres de lin produites par l'entreprise Van Robaeys Frères. Dans un premier temps, le choix des variétés de lin cultivées pour Van Robaeys Frères est analysé. Ensuite, la variabilité des propriétés mécaniques des fibres de lin et son influence sur les propriétés mécaniques de matériaux composites sont étudiées.

Chapitre I ELEMENTS DE BIBLIOGRAPHIE

Ce premier chapitre regroupe quelques éléments de bibliographie concernant le lin et son utilisation en tant que renfort de matériaux composites. Loin d'être exhaustifs, les points développés ici permettent au lecteur d'aborder les travaux présentés dans la suite de ce manuscrit de thèse de doctorat.

Après avoir donné quelques éléments sur le positionnement du lin au sein des plantes à fibres, la composition et la morphologie de la plante de lin est abordée. Ensuite, le comportement en traction des fibres de lin et certains des paramètres influençant les propriétés mécaniques moyennes sont explicités. Suivront, la culture du lin et la transformation de la paille de lin jusqu'aux renforts de composites. Enfin les propriétés de matériaux composites renforcés par des fibres de lin sont abordées et les relations entre les propriétés mécaniques des fibres et celles de matériaux composites sont mises en évidence.

1. LE LIN, UNE PLANTE A FIBRES

Il existe une multitude de plantes à fibres de par le monde (Franck, 2005). Celles-ci sont adaptées au climat local. Les fibres peuvent y être trouvées sous des formes diverses. Les fibres libériennes sont contenues dans la tige des plantes comme le jute, le chanvre, le lin, le kenaf, l'ortie et le bambou. On retrouve également des fibres dans les feuilles d'abaca, de sisal, ou les graines de coton, de kapok, dans l'enveloppe des fruits comme la noix de coco. Les fibres possédant une fonction structurelle au sein de la plante sont à privilégier pour la fabrication de matériaux composites, car elles présentent généralement de bonnes propriétés mécaniques.

L'ADEME et la société FRD ont produit en 2011 un rapport concernant la disponibilité des fibres végétales. Au niveau mondial, la moitié du gisement de fibres, hors coton et bois, est issue de la culture du jute, puis viennent ensuite le coco et le lin (Figure 2).

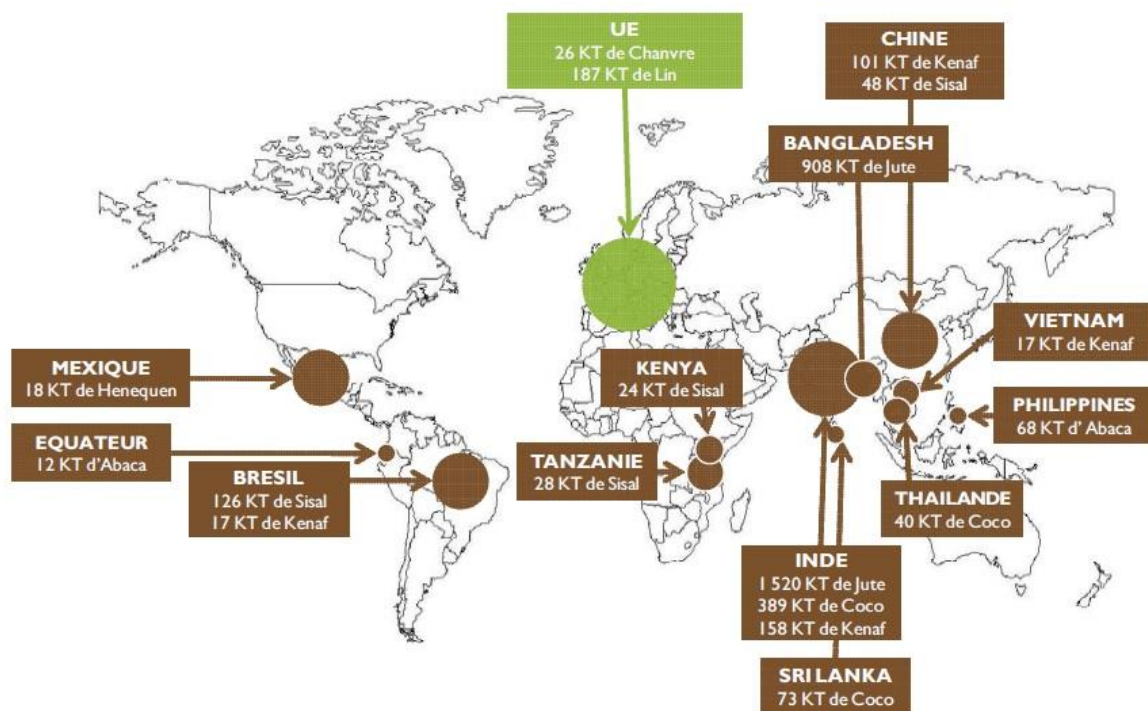


Figure 2 Répartition de la production mondiale de fibres végétales hors coton et bois 2001-2008 (ADEME/FRD, 2011).

En Europe, les plantes à fibres les plus cultivées sont le lin et le chanvre. 75 % des surfaces de culture européennes de lin sont situées en France soit environ 80 000 ha, ce qui en fait une ressource locale disponible.

Le lin cultivé (*Linum usitatissimum* L.) est une plante dicotylédone annuelle de la famille des linacées. Il en existe de multiples variétés. Elle est constituée d'une tige non ramifiée au sommet de laquelle se développent les fleurs, puis les capsules de graines. La plante est élancée. A maturité, elle peut mesurer jusqu'à 1 m hauteur pour un diamètre de tige d'environ 1 à 3 mm (Booth et al., 2004b; Salmon-Minotte, 2005). Les tiges de lin contiennent en leur sein des tissus de soutien fibreux, qui leur permettent de résister aux sollicitations mécaniques importantes provoquées par le vent et les intempéries. C'est le rôle de renfort dans la tige qui confère aux fibres de lin leurs propriétés mécaniques élevées.

2. COMPOSITION ET MORPHOLOGIE DU LIN ET DE SES FIBRES

La plante de lin possède une structuration complexe, au sein de laquelle coexistent plusieurs échelles. Les niveaux d'organisation sont macroscopiques à l'échelle de la tige, microscopiques à l'échelle de la fibre unitaire et nanoscopiques à l'échelle des fibrilles de cellulose qui renforcent les parois végétales (Figure 3).

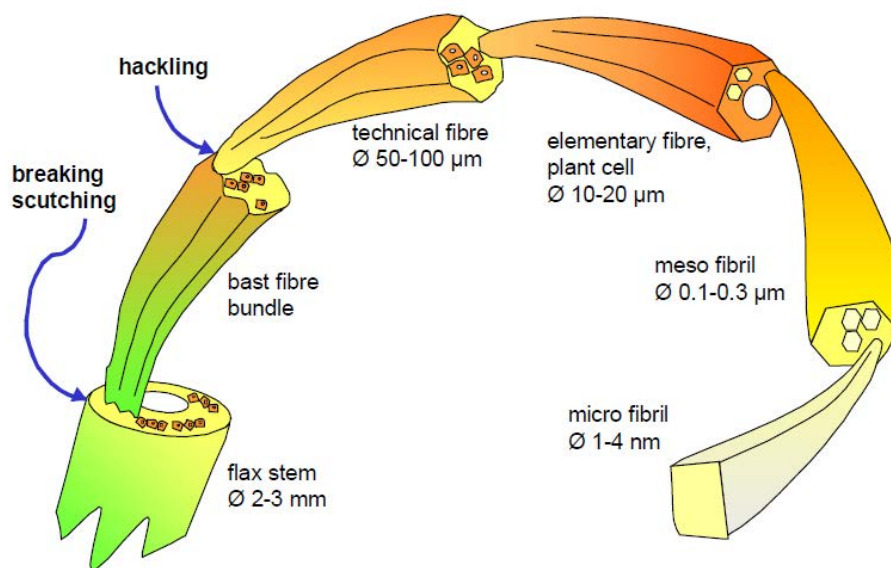


Figure 3 Représentation schématique du lin, de la tige jusqu'aux fibrilles de cellulose (Bos et al., 2006).

2.1. Composition biochimique

Le lin est composé de polysaccharides, donc d'un assemblage de plusieurs oses (Morvan et al., 2003). Il s'agit majoritairement de fibrilles de cellulose englobées dans une matrice de polysaccharides non cellulosique amorphes constituée d'hémicelluloses et de

pectines. On retrouve également des composés phénoliques et aromatiques contenus dans les lignines et les cires, ainsi que des minéraux. Enfin, le lin contient une certaine quantité d'eau dans des conditions habituelles de stockage.

Cellulose	Hémicelluloses	Pectines	Lignines	Autre	Eau	Référence
64,1	16,7	1,8	2,0	5,4	10	(Batra, 1985)
71	18,6-20,6	2,3	2,2	1,7	8-12	(Mohanty et al., 2000)
62-71	16-18	1,8-2,0	2,0-2,5	1,5	/	(Franck, 2005)
85	9	/	4	1	/	(Keijzeret Metz, 1992)
64-86	3-27		0-1	/	/	(Kozlowski et al., 2005)

Tableau 1 Proportions de constituants des fibres de lin trouvés dans la littérature.

Selon les études, la composition de la plante est variable et peut dépendre des variétés de lin, du degré de maturité et de rouissage et de décortication des fibres, ainsi que des méthodes utilisées pour la détermination des constituants (Tableau 1).

2.1.1. Cellulose

La cellulose représente environ 50 % de la biomasse végétale de la planète. Ce polymère naturel est le constituant majoritaire des fibres de lin, où il représente environ 75 % de la masse des fibres (Tableau 1). La cellulose est une macromolécule composée de monomères de D-Glucose ($C_6H_{12}O_6$) liés entre eux par une liaison de type osidique en position β (1,4). La formule brute de la cellulose est $[(C_6H_{10}O_5)_2]_n$ (Figure 4). Le motif de répétition constitué de deux glucoses est appelé cellobiose. Les chaines sont linéaires et non ramifiées avec un degré de polymérisation de 8000. Il existe des interactions faibles sous forme de liaisons hydrogène au sein d'une même chaine (intra-chaine) et entre les chaines de cellulose voisines (inter-chaine).

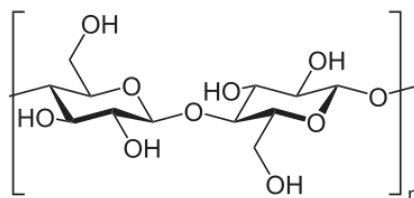


Figure 4 Représentation de la cellulose en conformation chaise.

Grâce à ces interactions, les chaines macromoléculaires peuvent s'associer entre elles pour former un édifice cristallin. La cellulose existe à l'état naturel dans la biomasse sous deux formes différentes de cristal, I_α et I_β , désignées ensemble par le terme de cellulose I

(O'sullivan, 1997). Il existe également des zones dites amorphes où la cellulose ne possède pas d'ordre à longue distance. Le taux de cristallinité de la cellulose des plantes à fibres est variable selon les types de plantes et la méthode de mesure, mais elle peut être élevée et atteindre jusqu'à 90% (Célino et al., 2013; Duchemin et al., 2012; Park et al., 2010). Le module d'Young de la cellulose I est évalué à environ 134 GPa (Salmén, 2004). C'est le module élastique élevé de la cellulose cristalline associé à un faible angle micro fibrillaire qui confère leur rigidité aux fibres de lin.

2.1.2. Hémicelluloses

Après la cellulose, les hémicelluloses sont les seconds polysaccharides les plus abondants dans les fibres de lin. Il existe plusieurs types d'hémicelluloses dans les fibres de lin. Ce sont des assemblages complexes d'oses ayant en commun avec la cellulose la liaison osidique en position β (1,4). Par contre, contrairement à la cellulose, les chaînes sont ramifiées et plus courtes (DP = 100 à 800). Cousins (1978) a montré que les hémicelluloses possèdent une capacité de sorption d'eau importante. Le même auteur a montré que l'augmentation de la teneur en eau diminue fortement le module d'Young de ces polysaccharides. Celui-ci peut varier de 0,01 à 8 GPa. Les principales hémicelluloses rencontrées dans les fibres de lin sont des xyloglucanes, des glucomannanes, plutôt présentes dans la paroi primaire, ou encore des xylanes, plutôt présentes dans la paroi secondaire (Morvan et al., 2003).

2.1.3. Pectines

Les pectines sont des polysaccharides riches en acide galacturonique (Willats et al., 2001). Ce sont principalement des rhamnogalacturonanes, des homogalacturonanes contenues dans les lamelles mitoyennes et la paroi primaire des fibres, ainsi que des chaînes de galactanes majoritaires dans la paroi secondaire (Morvan et al., 2003). Les pectines forment également des complexes avec le calcium nommé pectates de calcium. Ces complexes sont retrouvés dans les lamelles mitoyennes aux jonctions tricellulaires (Jauneau et al., 1994; Morvan et al., 2003).

La capacité de sorption d'eau des pectines est élevée. D'après les travaux de Panchev et al. (2010), la sorption d'eau de pectines de pommes, tournesol ou citron peut aller jusqu'à 95% par rapport à la masse de produit sec pour une humidité relative proche de 96%. Cette prise de masse est dépendante de la température et augmente avec celle-ci. A ce jour, il n'y a

à notre connaissance, pas d'informations dans la littérature concernant la sorption d'eau de pectines extraites directement de fibres de lin.

2.1.4. Lignines

Les lignines sont les polymères les plus abondants dans la biomasse végétale après la cellulose. Cependant, pour le lin, la proportion de lignines est très faible dans les fibres en elle-même, celles-ci sont majoritairement localisées dans le bois et l'écorce de la plante (Akin et al., 1996). Ce sont des composés phénoliques. Les lignines présentes dans le lin sont l'acide ferulic, le guaiacyl et le syringyl (Akin et al., 1996).

2.1.5. Eau

Les fibres de lin sont hydratées dans les conditions normales de température et d'humidité et possèdent une quantité d'eau d'environ 5-10 % (Baley et al., 2005; Bourmaud et al., 2010; Van de Velde et Baetens, 2001). Par ailleurs, la proportion d'eau des fibres de lin varie en fonction de l'hygrométrie et de la température de l'atmosphère (Hill et al., 2009).

On distingue plusieurs types d'eaux: l'eau liée et l'eau libre. L'eau liée est l'eau directement liée aux groupements hydroxyles des polysaccharides au sein des parois végétales. L'eau libre, par opposition, est l'eau non liée. L'utilisation de la DSC permet de quantifier ces types d'eau (Nakamura et al., 1981). Il est possible de quantifier la quantité d'eau présente dans des fibres végétales par spectroscopie IR, ainsi qu'identifier les sites de sorption de l'eau (Célino et al., 2014).

2.1.6. Organisation de la tige de lin et des faisceaux de fibres

Le lin possède une tige organisée en plusieurs couches concentriques (Akin et al., 1996; Morvan et al., 2003) (Figure). De l'extérieur vers l'intérieur de la tige, celle-ci est composée de l'épiderme recouvert d'une cuticule, du cortex appelé aussi parenchyme cortical ou écorce, du phloème, du cambium, du xylème aussi appelé le bois. Le centre de la tige est vide.

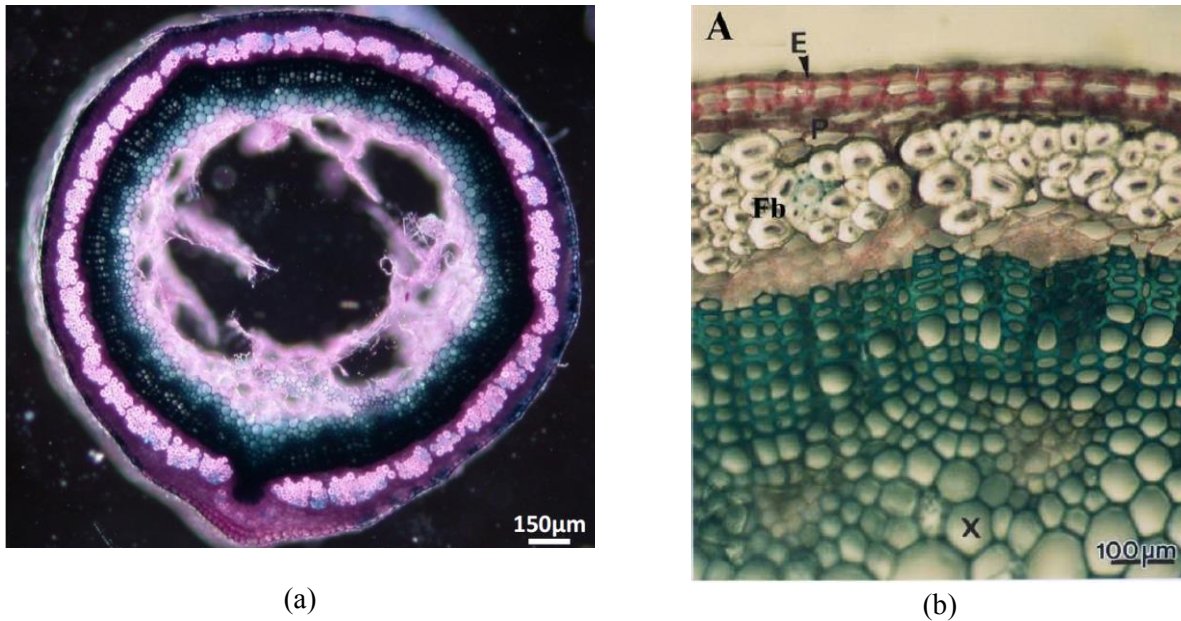


Figure 5 Vues en coupe de tige de lin par microscopie optique. (a) Adapté de (Gorshkova et al., 2012). (b) E: Epiderme P: Parenchyme cortical. Fb: Faisceaux de fibres. X: Xylème. Adapté de Morvan et al. (2003).

A la périphérie de la tige, des faisceaux de fibres sont situés dans le phloème. La Figure 6 permet d'illustrer l'organisation d'un faisceau de fibre. La Figure 6a) est une vue en coupe d'un faisceau de fibres et la Figure 6b), une représentation schématisée d'une vue en coupe d'un faisceau. La Figure 6c) est un schéma de principe de l'organisation longitudinale d'un faisceau de fibre. Ces faisceaux sont présents sur toute la longueur de la tige. Ils sont constitués de milliers de fibres unitaires assemblées avec des décalages (Figure 6c). La section d'un faisceau de fibres possède une forme ovoïde et contient environ 30 à 40 fibres élémentaires. Chaque tige peut contenir de 20 à 30 faisceaux.

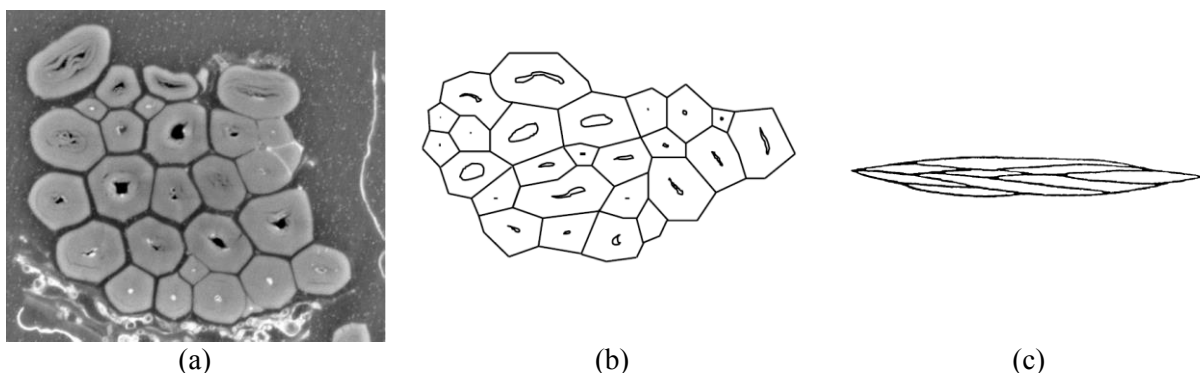


Figure 6 (a) Vue en coupe d'un faisceau de fibres (Bourmaud, 2011). (b) Schéma de principe d'une section de faisceau de fibres de lin (Baley, 2002). (c) Schéma de principe de l'organisation longitudinale d'un faisceau de fibres (Baley, 2002).

Les faisceaux de fibres sont constitués de fibres unitaires assemblées entre elles par des ciments naturels, les lamelles mitoyennes (Figure 7).

Les lamelles mitoyennes sont majoritairement constituées de pectines (Morvan et al., 2003). Au niveau des jonctions tri cellulaires, entre trois fibres, des pectines liées par des ponts calcium maintiennent également la cohésion des faisceaux (Jauneau et al., 1994).

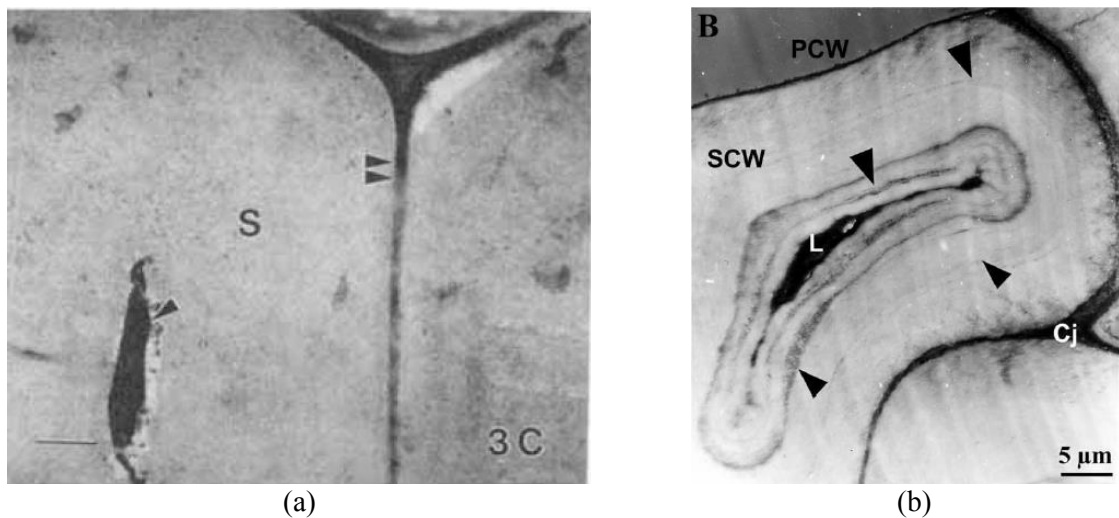


Figure 7 Vues en coupe de jonction entre 3 fibres de lin par microscopie électronique en transmission (a) S: paroi secondaire. Flèche: Lumen. Double flèche: Lamelle mitoyenne. Adapté de (Akin et al., 1996). (b) PCW: paroi primaire. SCW: paroi secondaire. Cj: jonction tricellulaire. Adapté de (Morvan et al., 2003).

2.1.7. Organisation d'une fibre élémentaire de lin

Les fibres élémentaires possèdent une section polygonale avec en général de 4 à 7 faces. Leur diamètre moyen est d'environ 15 μm et peut varier de 5 à 30 μm (Batra, 1985). Le diamètre varie d'un lot de fibres à un autre mais également d'une fibre à une autre et le long de la fibre (Charlet et al., 2010a, 2010b). La longueur d'une fibre unitaire mesure de 10 à 70 mm (Franck, 2005).

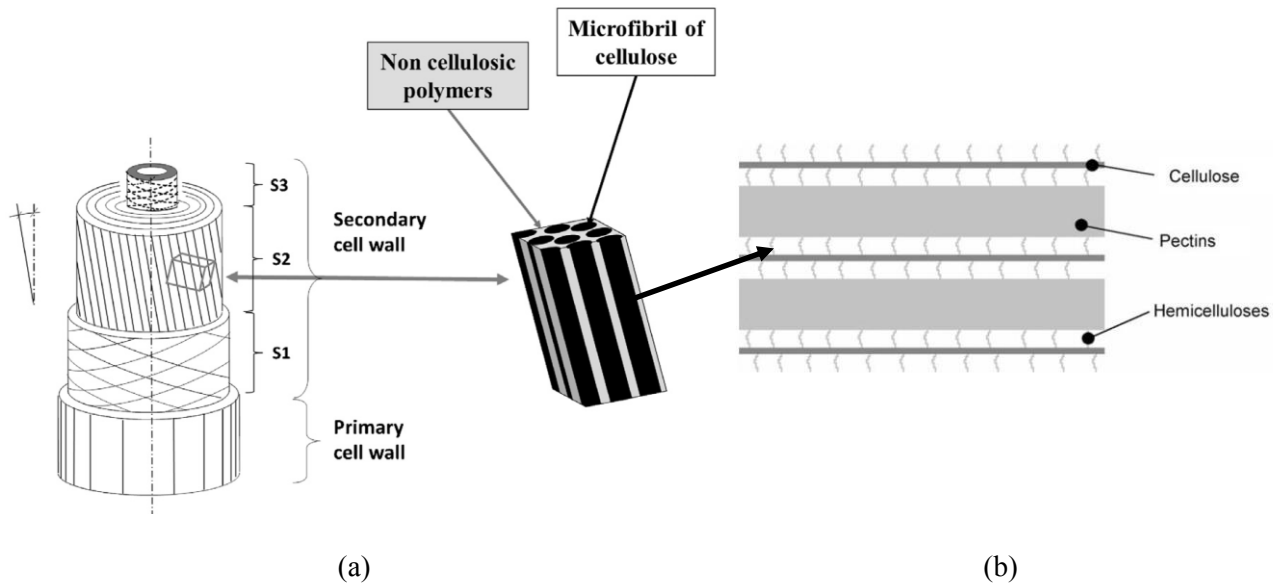


Figure 8 (a) Représentation schématique de la structure possible d'une fibre de lin et de l'agencement des microfibrilles de cellulose dans la matrice de polysaccharides amorphes au sein de la couche S2 (Lefeuve et al., 2013) (b) Organisation simplifiée des constituants de la paroi secondaire (Charlet et al., 2009).

La microstructure des fibres végétales est complexe, dû à l'organisation multi-échelle et multi-constituants des parois. Une fibre élémentaire de lin est constituée d'un empilement de couches concentriques, et d'une cavité centrale appelée lumen (Figure 8). Chaque couche possède une structure composite. La fibre est subdivisée en deux parois principales. La paroi externe est appelée paroi primaire. Elle possède une faible épaisseur d'environ 0,2 μm (Bos et Donald, 1999). Elle contient peu de cellulose et est majoritairement constituée de pectines (Morvan et al., 2003). La paroi secondaire représente la majeure partie de la fibre avec une épaisseur de 5 à 15 μm . Elle est elle-même subdivisée en 3 couches, S1, S2 et S3 dont S2 est la plus épaisse. On considère que la couche S2 contribue majoritairement aux performances mécaniques des fibres. L'angle microfibrillaire de la couche S2 est d'environ 10° (Bledzki et Gassan, 1999). La couche S2 est majoritairement constituée de microfibrilles de cellulose parallèles entre elles et enveloppées dans une matrice de polysaccharides amorphes, notamment des pectines et des hémicelluloses (Figure 8b). Les fibrilles de cellulose sont un assemblage de mesofibrilles d'un diamètre de 0,5 μm , elles-mêmes formées par l'association de microfibrilles de quelques nanomètres de diamètre. La taille du lumen dépend du niveau de remplissage des parois et donc de la croissance et de la maturité des fibres. Le lumen contient le noyau et le cytoplasme de la cellule végétale pendant la phase de croissance. Ceux-ci disparaissent avec la mort de la cellule.

2.2. Masse volumique des fibres

La masse volumique des fibres végétales est variables selon les variétés (Batra, 1985). Elle est néanmoins située autour de $1,50 \text{ g.cm}^{-3}$. Batra (1985) a mesuré une densité apparente, (i.e. vides inclus) des fibres de lin de $1,38 \text{ g.cm}^{-3}$, et une densité réelle de $1,54 \text{ g.cm}^{-3}$. Baley (2002) a mesuré une masse volumique de $1,53 \text{ g.cm}^{-3}$. Les données de la littérature n'indiquent pas le contenu en eau de ces fibres. Célineo et al. (2013) rapportent une valeur de $1,358 \text{ g.cm}^{-3}$ proche de celle mesurée par Batra (1985).

3. PROPRIETES MECANQUES EN TRACTION DES FIBRES DE LIN

La caractérisation mécanique des fibres unitaires de lin par traction est le type de test mécanique le plus répandu dans la littérature. Il existe aussi le test de boucle (loop test). Ce test permet d'étudier le comportement d'une fibre de lin en compression, par l'intermédiaire d'une sollicitation de flexion (Bos et al., 2002). La nanoindentation est également une technique utilisée pour caractériser la réponse mécanique des parois de fibres végétales (Bourmaud et Baley, 2012). Le test de traction sur faisceaux de fibres est aussi utilisé (Barbulée et al., 2014; Romhányi et al., 2003)

3.1. Comportement en traction

Contrairement à des fibres de renfort courantes telles que les fibres de verre, le comportement en traction d'une fibre de lin est non linéaire (Baley, 2005). La Figure 9a présente le comportement en traction d'une fibre unitaire de lin (Baley, 2002). Une première zone linéaire située en pied de courbe correspond à la mise en charge globale de la fibre. Puis, on observe une chute progressive du module suivi d'une reprise de charge accompagnée d'une augmentation du module quasi linéaire jusqu'à rupture. Des travaux ont montré, qu'en réalité, le module d'Young augmente jusqu'à rupture de la fibre (Baley et al., 2012; Gourier et al., 2014; Lefeuvre et al., 2014a). Ce comportement en traction particulier met en jeu la réorientation partielle des fibrilles de cellulose conjointement aux glissements de celles-ci les unes par rapport aux autres. Il faut noter que des comportements non linéaires en traction sont aussi observés sur des fibres synthétique comme par exemple le polyéthylène terephthalate, le polyamide ou le polyéthylène haut module (Bunsell, 2009).

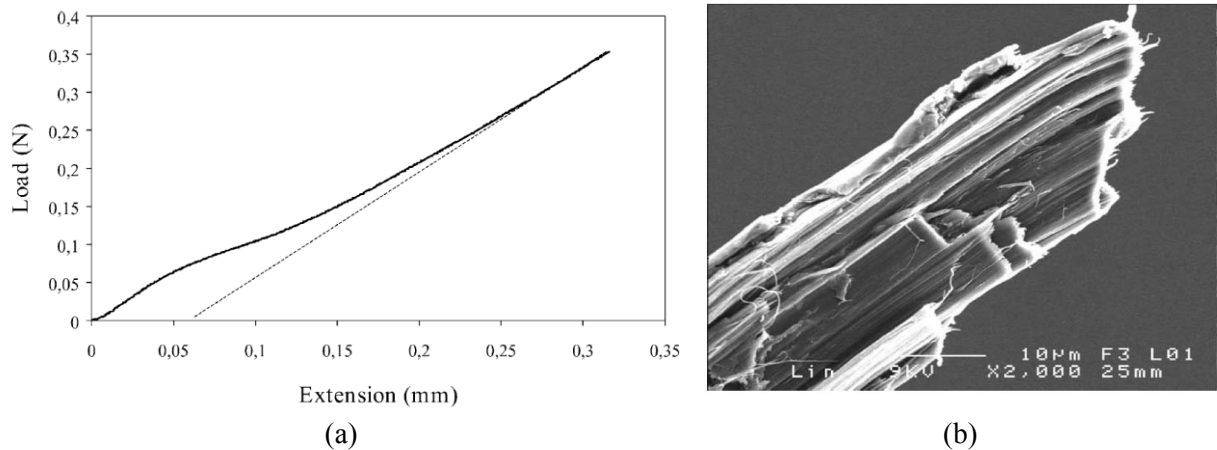


Figure 9 (a) Courbe force-déplacement typique lors de la traction d'une fibre unitaire de lin. (b) Faciès de rupture d'une fibre de lin en traction (Baley, 2002).

D'après (Hearle, 1963), le réseau constitué des fibrilles de cellulose et de polysaccharides amorphes de la sous couche S2 de la paroi secondaire, est déformé par cisaillement. Au-delà d'une contrainte seuil, le réseau peut s'écouler et se réarranger suite à la rupture des liaisons hydrogènes au sein de la matrice de polysaccharides amorphes. Suite à ce réarrangement, les efforts peuvent être à nouveau transmis grâce à ce mécanisme de type stick-slip (Keckes et al., 2003). Cet écoulement permettrait la réorientation partielle des fibrilles et induirait la diminution de l'angle micro fibrillaire. La diminution de l'angle microfibrillaire de fibres unitaires suite à un essai de traction a été mis en évidence notamment par Burgert (2006) pour du bois et par Thuault (2011) pour du lin. L'étude du faciès de rupture d'une fibre de lin permet de visualiser l'orientation finale des fibrilles de cellulose. Celles-ci sont orientées suivant un angle microfibrillaire nul uniquement dans la zone de rupture (Figure 9b).

Le comportement décrit ci-avant (Figure 9a) correspond à celui le plus décrit dans la littérature. Des travaux récents ont montré qu'il existait en fait trois types de courbes de comportement (Figure 10). Cet aspect a été mis en évidence pour des fibres de chanvre (Duval et al., 2011; Placet et al., 2014) et pour des fibres de lin (Gourier et al., 2014; Lefevre et al., 2014a). Le comportement majoritairement observé est le comportement de type 3 présenté en Figure 9a.

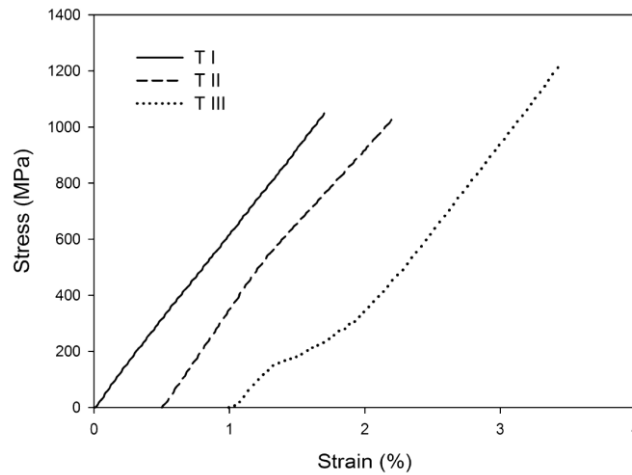


Figure 10 Trois types de courbes contrainte/déformation obtenues pour les fibres de lin (Lefevre et al., 2014a).

3.2. Propriétés mécaniques moyennes des fibres de lin

Le Tableau 2 présente les propriétés mécaniques en traction de fibres unitaires de lin, rapportées dans la littérature. Pour les données présentées ici, les valeurs moyennes de module d'Young (E) des lots varient de 31,4 GPa à 68,2 GPa, les valeurs moyennes de contrainte à rupture (σ) varient de 751 MPa à 1339 MPa, et les valeurs de déformation à rupture (ε) varient de 1,6 % à 3,3 %.

Variété	Diamètre moyen (μm)	E (GPa)	σ (MPa)	A (%)	Référence
Ariane	$17,8 \pm 5,2$	$54,1 \pm 15,1$	1339 ± 486	$3,3 \pm 0,8$	(Baley, 2002)
Electra	$15,4 \pm 4,9$	$51,1 \pm 15,0$	808 ± 342	$1,6 \pm 0,5$	(Bourmaud et al., 2010)
Oliver	$17,5 \pm 3,6$	$47,2 \pm 21,3$	751 ± 414	$1,7 \pm 0,6$	(Bourmaud et al., 2013b)
Marylin	$15,85 \pm 3,9$	$53,8 \pm 14,3$	1215 ± 500	$2,2 \pm 0,6$	(Bourmaud et al., 2013a)
Alizée	$15,20 \pm 3,3$	$47,9 \pm 16,1$	1012 ± 391	$2,3 \pm 0,7$	(Roussière et al., 2012)
Oliver	$15,3 \pm 4,5$	$55,5 \pm 20,9$	899 ± 461	$1,7 \pm 0,6$	(Pillin et al., 2011)
Hermès	$19,6 \pm 6,7$	$68,2 \pm 35,8$	1454 ± 835	$2,3 \pm 0,6$	(Charlet et al., 2007)
Agatha	$21,3 \pm 6,3$	57 ± 29	865 ± 413	$1,8 \pm 0,7$	(Charlet et al., 2009)
/	$18,9 \pm 4,3$	$31,4 \pm 16,2$	974 ± 419	3,00	(Aslan et al., 2011)

Tableau 2 Comparaison des propriétés mécaniques en traction de fibres unitaires provenant de différents lots de fibres de lin.

Baley et Bourmaud, (2014) ont regroupé dans une seule étude les propriétés mécaniques en traction de fibres unitaires de lin cultivées entre 1993 et 2011 et testées au LIMATB (Figure 11). Les essais ont été effectués dans les mêmes conditions d'essais pour tous les lots, en suivant la norme XP T 25-501-2.

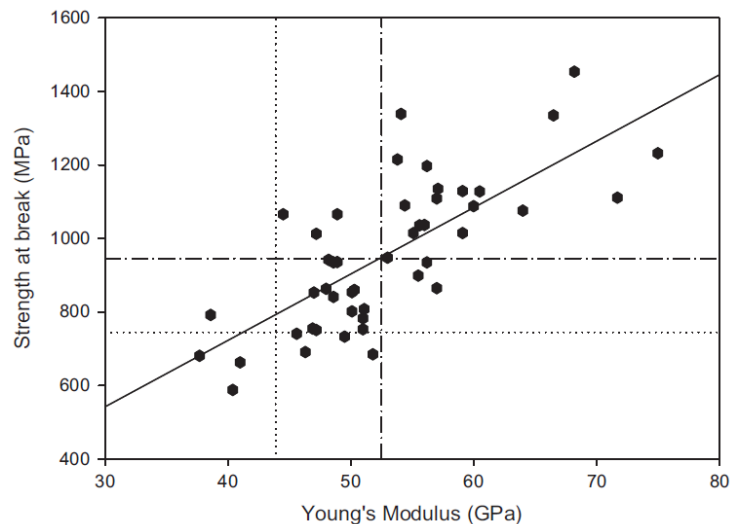


Figure 11 Contrainte à rupture en traction en fonction du module d'Young pour 50 lots de fibres de lin (Baley et Bourmaud, 2014).

Les auteurs notent également une dispersion importante des propriétés. Néanmoins, malgré ces dispersions, il est possible de définir des propriétés minimales au-dessus desquelles sont situées les propriétés de la majeure partie des lots. Cette limite est définie par $E = 43,9$ GPa, $\sigma = 745$ MPa et $\varepsilon = 1,62$ %. La dispersion des valeurs de propriétés mécaniques entre des lots différents pourrait être due à des paramètres caractéristiques (variétés, sol, condition pédo-climatique). Au sein d'un même lot, les propriétés sont aussi dispersées. Il peut ici s'agir de la variabilité intrinsèque des propriétés mécaniques des fibres. Cette dernière dispersion peut être également attribuée à la difficulté à accéder à la section résistante réelle des fibres (Virk et al., 2010) et au fait que le développement des fibres est étalé dans le temps au cours de la croissance.

3.3. Paramètres influençant les propriétés mécaniques des fibres

3.3.1. Influence du diamètre des fibres

Pour certains lot, la diminution des diamètres des fibres unitaires entraîne une augmentation du module d'Young et de la contrainte à rupture, tandis que la déformation à rupture est peu affectée (Figure 12) (Baley, 2002; Charlet et al., 2007; Lamy et Baley, 2000). La diminution du module d'Young et de la contrainte à rupture des fibres peut être reliée à l'augmentation de la taille du lumen avec l'augmentation du diamètre, à l'erreur lors de la mesure du diamètre, ainsi qu'à une évolution de la composition biochimique. La baisse de la contrainte à rupture des fibres peut également s'expliquer par l'augmentation du nombre et de la taille des défauts induits par l'augmentation du diamètre.

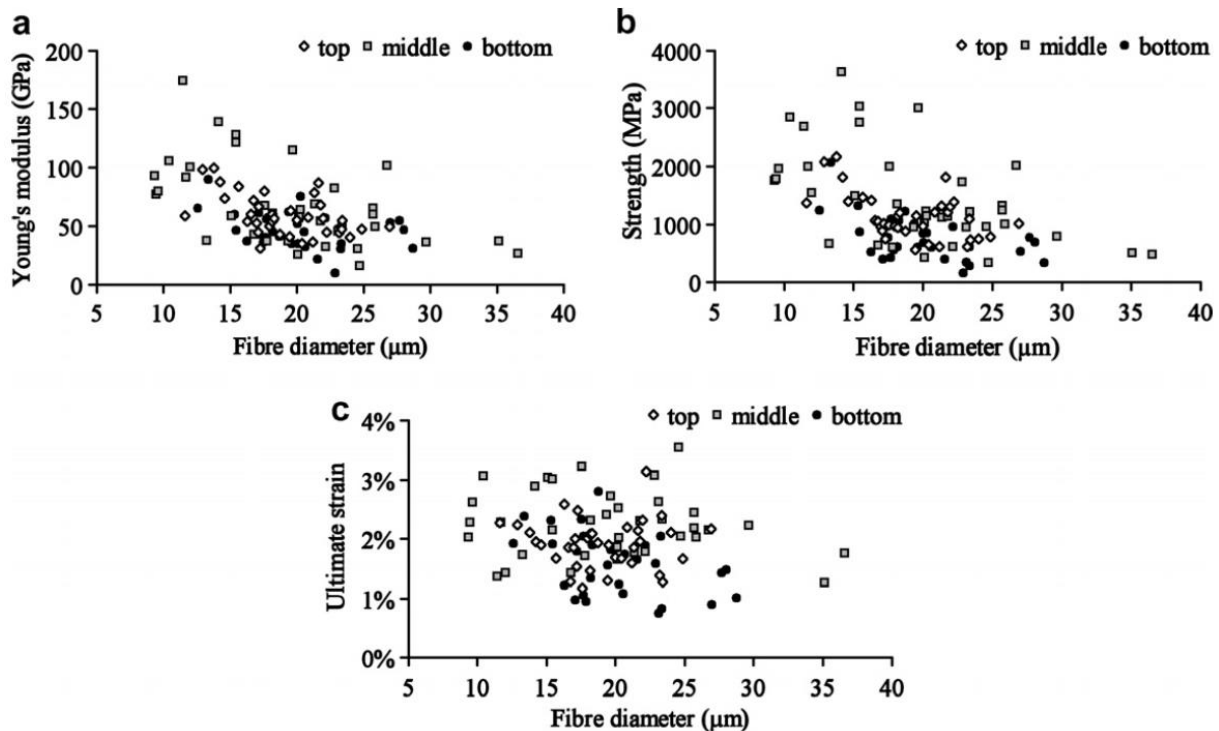


Figure 12 Evolution du module d'Young (a), de la contrainte à rupture (b) et de la déformation à rupture (c) de fibres unitaires de lin en fonction de leur position dans la tige et de leur diamètre (Charlet et al., 2007).

Le diamètre des fibres n'est pas constant et évolue le long de la fibre (Charlet et al., 2010a, 2010b). Au sein d'un même lot de fibre, il existe donc une variabilité inter fibres et intra fibres du diamètre. Dans ces mêmes travaux, les auteurs ont proposé d'utiliser la valeur du diamètre de fibres mesurée dans la zone de rupture, afin de s'affranchir de la variation du diamètre le long de la fibre. Peu de différence était observé entre les propriétés calculées à

partir de la valeur du diamètre à rupture et celles calculées à partir de la moyenne des mesures sur 3 points.

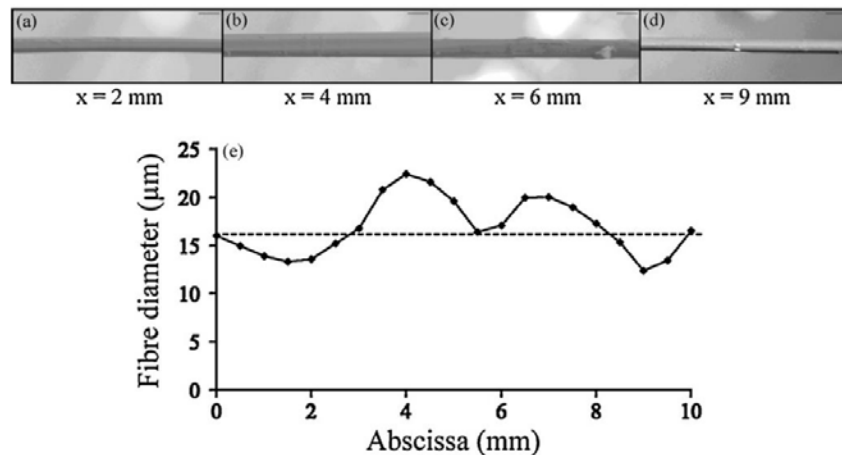


Figure 13 Evolution de la valeur de diamètre le long de la fibre (Charlet et al., 2010a).

Une des difficultés résidant dans la mesure des propriétés mécaniques en traction, est la mesure précise de la section résistante des fibres (Virk et al., 2010). La mesure de la section résistante réelle est difficile et celle-ci est, dans la plupart des travaux, approximée en considérant une section circulaire calculée à partir de la valeur du diamètre apparent des fibres. Ce dernier étant mesuré par observation au microscope optique, dans la direction transverse à l'axe de la fibre.

Il est important de noter les sources d'erreurs lors de la mesure du diamètre d'une fibre unitaire. La mesure du diamètre dans la direction transverse à l'axe de la fibre, ne permet de mesurer qu'un diamètre apparent et ne prend pas en compte la forme de la section polygonale souvent irrégulière ou allongée des fibres (5-7 faces). La valeur mesurée peut donc dépendre de l'angle d'observation. Par ailleurs, la section du lumen n'est pas considérée dans les calculs.

Hu et al (2010) ont proposé de mesurer l'aire réelle de la section transverse de faisceaux de fibres de lin après traction. La procédure consistait à repérer la zone de rupture, puis enrober le faisceau dans une résine de coulée et polir la section avant observation de la section au MEB. Cette méthode permettait de réduire la dispersion des données de traction, cependant elle semble extrêmement fastidieuse et difficile à réaliser. Cette méthode considère par ailleurs qu'il n'y a pas de réduction de la section lors de la rupture de la fibre.

Virk et al. (2010) proposent d'utiliser la déformation à rupture comme critère de dimensionnement de biocomposites, afin de s'affranchir des incertitudes provenant de l'utilisation de la contrainte à rupture et du module d'Young.

Les travaux de Lefeuvre et al. (2013) montrent que l'incertitude de mesure du diamètre des fibres représente 78 % de l'incertitude de mesure du module d'Young et 93 % de l'incertitude de mesure de la contrainte à rupture.

Malgré les sources d'erreur énumérées ci-avant, la détermination de la section des fibres unitaires à l'aide de la mesure du diamètre dans la direction transverse à l'axe de la fibre reste une méthode simple et rapide pour estimer la section des fibres.

3.3.2. Influence de la zone de prélèvement

Des travaux montrent que la zone de prélèvement dans la tige influence les propriétés mécaniques des fibres végétales (Charlet et al., 2009, 2007). Les études ont été réalisées pour des lins de la variété Hermès et Agatha. Les fibres issues du pied de la plante possédaient les propriétés les plus faibles tandis que celles issues du milieu de la tige possédaient les meilleures propriétés (Figure 12). Duval et al. (2011) ont également rapporté une influence de la zone de prélèvement dans la tige pour des fibres de chanvre.

3.3.3. Influence de l'humidité

Dans des conditions habituelles de stockage (25°C, 65% RH), les fibres végétales contiennent une certaine quantité d'eau d'environ 6-10 % (Faruk et al., 2012). L'eau est un plastifiant des parois cellulaires et une variation de la fraction d'eau influence les propriétés mécaniques en traction des fibres. Davies et Bruce (1998) ont montré une diminution du module d'Young de fibres de lin et d'ortie avec l'augmentation de l'humidité relative de l'atmosphère d'essai de traction.

Stamboulis et al. (2001) rapportent une augmentation de la contrainte à rupture de fibres de lin entre 30 % et 66 % d'humidité relative puis une stabilisation de la contrainte à rupture pour une humidité relative de 90 %.

Thuault et al. (2013) ont montré que la contrainte à rupture de fibres de lin augmentait avec l'humidité relative de l'atmosphère d'essai jusqu'à 70% puis chutait. Le module d'Young était par contre peu affecté par la variation de l'humidité relative.

Baley et al. (2005) ont montré qu'un séchage à 105 °C pendant 14h entraînait une diminution de la résistance à rupture des fibres de lin. Par ailleurs, après séchage, le retour à l'atmosphère initiale, permettait une reprise d'humidité des fibres, mais ne permettait qu'un recouvrement partiel des propriétés mécaniques, par rapport aux fibres brutes. Dans une autre

étude, Baley et al. (2012) ont par contre montré que ce séchage n'a pas d'influence sur le module d'Young des fibres de lin.

En bilan, il semble d'après les travaux de littérature, que le maintien des fibres de lin à température ambiante et à une humidité relative de 50 % permet d'obtenir les meilleures performances mécaniques. Un retrait forcé de l'eau (chauffage au-dessus de 100 °C) entraîne par contre une perte de propriétés mécaniques irréversible.

3.3.4. Défauts

Des défauts sont retrouvés à la surface des fibres issues de plantes telles que le lin et le chanvre. L'origine et les conséquences de ces défauts ne sont pas formellement établis (Hughes, 2012). On entend ici par défauts, les marques observables à l'échelle de la fibre unitaire, à la surface de celle-ci. Ces marques sont observables au MEB (Figure 14a), ou par microscopie optique et caractérisées notamment par des bandes lumineuses lors de l'utilisation de lumière polarisée (Figure 14b). Dans la littérature, on retrouve les appellations kink-band, genou, nœud, et défaut micro compressif.

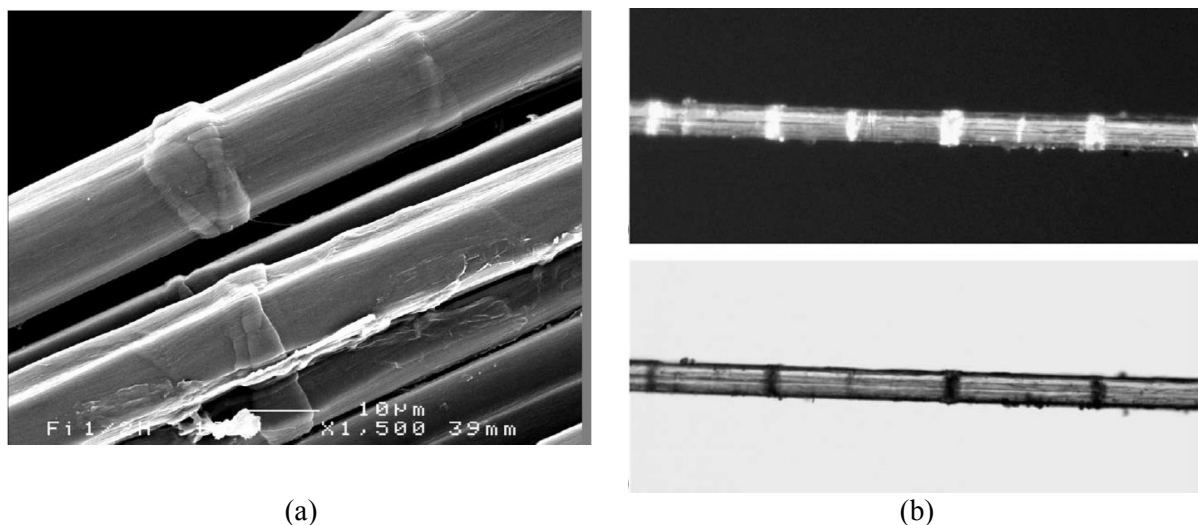


Figure 14 (a) Exemple de défauts observé au MEB (Baley, 2002) (b) Kink bands sur une fibre élémentaire de lin observé par microscopie optique en lumière polarisée (haut) et non polarisée (bas), diamètre de fibres ca. 23µm (Andersons et al., 2009a).

Les défauts observés à la surface des fibres de lin sont retrouvés sur des fibres non teillées et se développent donc pendant la croissance de la plante (Davies et Bruce, 1998). On retrouve également des défauts à la surface de fibres de chanvre provenant de plantes non décortiquée (Hänninen et al., 2012; Thygesen et Asgharipour, 2008). Thygesen et

Asgharipour (2008) ont montré que les conditions de croissance de plantes de chanvre, tels que le vent ou l'apport en eau, influencent le nombre de défauts observés sur les fibres.

Davies et Bruce (1998) ont relié la diminution du module d'Young de fibres de lin et d'ortie à l'augmentation de la surface de défauts observés sous lumière polarisée.

Baley (2004) a étudié l'influence du nombre de défaut sur la contrainte à rupture de fibres élémentaires de lin. Les résultats ne montrent pas de relation claire entre le nombre de défauts et la contrainte à rupture des fibres. Par contre, les kink bands ont été identifiés comme les zones les plus susceptibles de se rompre lors d'un essai de traction (Figure 15).

Le Duc et al. (2011) ont par ailleurs montré, à l'aide d'observation par rhéo optique in situ, que la rupture des fibres de lin lors du mélange avec un polymère fondu se produit au niveau des kink bands.

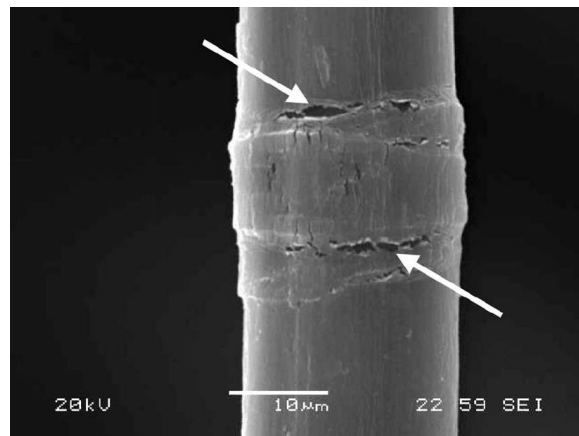
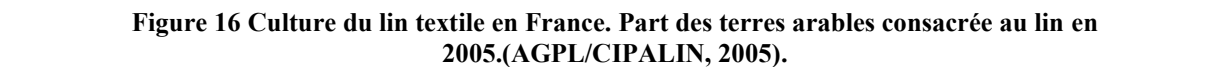


Figure 15 Observation meb in-situ lors d'un essai de traction d'une fibre unitaire. Initiation de fissures au niveau d'un kink band (Baley, 2004).

Thygesen et al. (2007) ont étudié l'influence de défauts sur les propriétés mécaniques de fibres de chanvre. La surface de défauts présents sur les fibres n'affectait ni le module d'Young ni la résistance en traction. Ces travaux ont par contre mis en évidence la disparition des défauts pendant l'essai. Ceux-ci réapparaissaient plusieurs semaines après rupture de la fibre. Ce phénomène est également observé par Placet et al. (2014), cependant les défauts réapparaissaient 5 minutes après essais.

4.1. Culture de la plante



Les semences sont déposées sur des lignes espacées d'environ 10 cm. La densité de semis est généralement de 1800 g/m². Un peuplement de 1500 à 1600 plantes levées est optimal (Bert, 2013). Cette densité de semis permet un bon compromis entre rendement à

l'hectare et risque de verse. En effet des semis trop denses, accompagnés d'un apport azoté trop élevé et une variété non adaptée au terroir favorisent un risque de développement trop rapide des tiges, ne les rendant pas suffisamment résistantes en cas de vent fort ou de pluie d'orage. Il y a un risque de verse des plantes, cela signifie qu'elles se couchent au sol (Setter et al., 1997). Des tiges versées peuvent se relever d'elles-mêmes ou rester couchées au sol si elles sont trop endommagées (Figure 17).



Figure 17 Champ de lin cultivé sur la commune de Bambecque (Nord) en 2012. (a) Champ versé suite à un orage. (b) Champ en partie relevé 10 jours plus tard.

La croissance du lin s'étale sur environ 100 jours après le semis. La période d'émergence et de levée dure environ 1 mois. Puis une phase de croissance rapide intervient durant laquelle la tige atteint presque sa hauteur finale en 2 semaines. La floraison intervient au mois de juin, puis un mois après les tiges sont matures et peuvent être arrachées.

La somme cumulée de la moyenne des températures journalières permet d'estimer le moment où il faut arracher le lin. Ce cumul correspond à la somme des moyennes journalières entre les températures maximales relevées pendant la journée et la nuit.

$$Somme\ cumulée = \sum_i^n \frac{(T_{max}^i + T_{min}^i)}{2} - 5$$

Un cumul de température de 950 à 1100 °C indique la maturité des fibres, un cumul de température de 1150°C indique la maturité des graines. Le lin est arraché lorsque les graines sont matures (Bert, 2013)



Figure 18 Photographie de lin. (a) A la levée, plante au stade cotylédon. (b) Floraison du lin.

Les plantes de lin textile sont habituellement arrachées au lieu d'être moissonnée, afin de pouvoir récupérer les fibres contenues dans le pied de la plante (Les plantes coupées par moissonnage classique perdent environ 10 cm). D'autres raisons sont avancées pour justifier l'arrachage. Des tiges coupées vont ruir plus vite que le reste de la plante, donnant des fibres sur-rouies dans la partie pied de la tige et entraînant des pertes de fibres pendant les opérations de teillage qui suivent (Pringle, 1953). Les plantes sont donc arrachées et déposées sur le champ en andains afin de subir l'étape de rouissage au sol.

La même parcelle n'est pas utilisée d'une année sur l'autre, pour cultiver du lin afin d'éviter l'appauvrissement du sol et le développement de champignons provoquant la fusariose. Il faut en effet de 6 à 7 ans pour semer du lin à nouveau. La culture d'un champ de lin suit souvent la culture d'une céréale à paille comme le blé ou l'avoine (Sultana, 1992a). Par ailleurs, le lin est souvent considéré comme une bonne tête d'assolement. C'est-à-dire qu'il peut être positionné en premier dans un système de rotation des cultures

4.2. Rouissage

L'étape de rouissage permet de faciliter la séparation des fibres du restant de la plante.

Le rouissage du lin permet de dégrader les ciments naturels qui lient les faisceaux de fibres au reste de la tige et ainsi de faciliter l'extraction des fibres. Quand les plantes de lin sont matures, à la fin du mois de juillet, les tiges sont arrachées afin de subir l'étape de rouissage. Le rouissage est en fait une dégradation semi contrôlée des tiges de lin (Van Sumere, 1992). Il s'agit de la première étape dans le processus normal de biodégradation de la plante.

Pendant le rouissage, les tiges de lin sont colonisées par des champignons et des bactéries. Ces microorganismes sécrètent des enzymes accélérant la dégradation des polysaccharides de la plante. L'activité enzymatique favorise surtout la dégradation des pectines (Brown et Sharma, 1984; Chesson, 1978; Henriksson et al., 1997; Meijer et al., 1995; Rosenberg et De França, 1967; Sharma, 1986). Les pectines des lamelles mitoyennes du parenchyme cortical, de l'épiderme, du xylème et des faisceaux de fibres sont dégradées ce qui permet de faciliter l'extraction des faisceaux lors du teillage. Les faisceaux de fibres sont également divisés (Figure 19) (Akin et al., 2001, 1996).

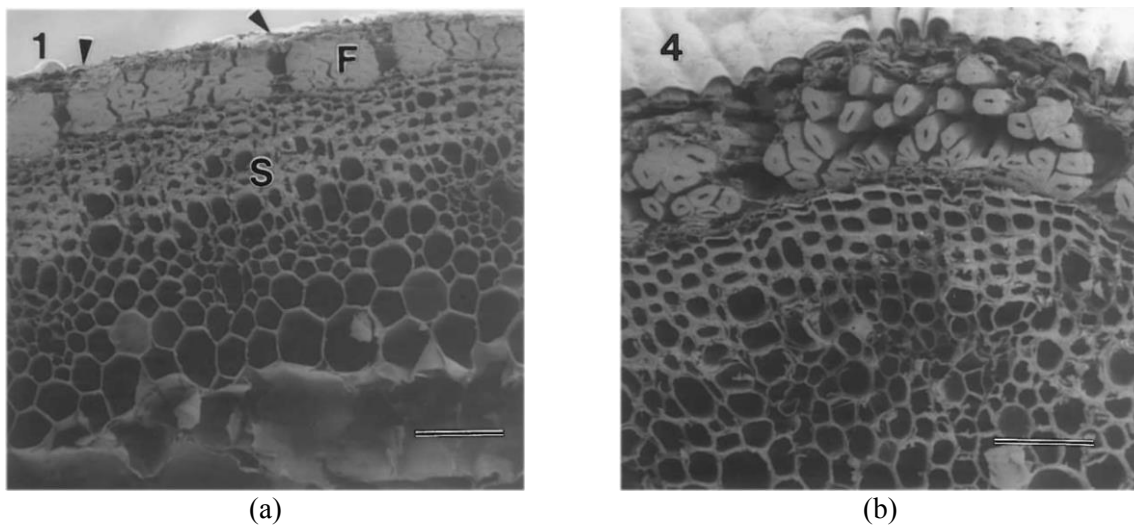


Figure 19 Observations au MEB de tiges de lin verte (a) et de tige de lin roui par voie enzymatique. Adapté de (Akin et al., 2001).

Historiquement, plusieurs types de rouissage existaient. Il pouvait être réalisé au champ, en rivière, ou à l'eau tiède. Ces techniques seront présentées ci-après. Des techniques de rouissage chimique et enzymatique ont été également développées. On insistera ici sur le rouissage au champ, technique actuellement utilisée en France.

4.2.1. Rouissage à l'eau

Le rouissage à l'eau était déjà utilisé au temps de l'Egypte ancienne. Il était effectué dans des marres d'eau stagnantes. Le lin y était mis en botte et alourdi afin de rester sous la surface de l'eau. Ce type de rouissage en rivière a été utilisé en Europe depuis le moyen âge jusqu'au milieu du 20^e siècle, puis abandonné à la suite de son interdiction pour des problématiques de pollution des eaux par les produits de fermentation de la paille. Le rouissage à l'eau tiède a par la suite été utilisé. Pour ce dernier, les tiges de lin étaient placées

dans des cuves remplies d'eau chauffée à une température de 30-40°C pour une durée pouvant varier de 3 à 7 jours. Il y avait souvent un premier lavage au bout d'une journée afin de retirer les premiers extractibles, puis la cuve était remplie à nouveau pour la suite du rouissage.

Lors du rouissage à l'eau tiède, des bactéries anaérobies, telles que le genre *Clostridium* provenant du sol et de la tige des plantes, se développaient (Rosemberg, 1965). Elles étaient considérées comme la première source d'activités enzymatiques. Les enzymes produites sont des polygalacturonases, des pectates-lyase et des pectines-estérases (Chesson, 1978).

Une fois le rouissage terminé les pailles étaient séchées à l'air libre, ce qui nécessitait un espace important. Ce type de rouissage avait l'avantage d'être relativement rapide et homogène et permettait de produire des fibres de haute qualité. Cependant, des acides organiques et autres produits de fermentation polluaient l'eau et lui donnaient une odeur nauséabonde, obligeant son retraitement avant rejet dans les cours d'eau. Malgré la qualité des fibres produites, le rouissage à l'eau chaude a été progressivement abandonné à partir des années 1970 à cause de la pollution des eaux et les coûts engendrés par les grandes quantités d'eau chaudes utilisées.

Le rouissage au champ est réapparu par la suite et est aujourd'hui le mode de rouissage le plus employé en Europe.

4.2.2. Rouissage au champ

Après arrachage des tiges de lin, la paille est étalée sur le champ sous forme d'andains (Figure 20), ceux-ci sont retournés une fois ou deux afin de rendre le rouissage homogène. Suite à la colonisation des tiges par les champignons, la couleur de celles-ci change au cours du rouissage (Pallesen, 1996). Une fois le rouissage terminé, les balles sont ramassées lorsqu'elles sont sèches.

Durant le rouissage, les tiges sont humidifiées et séchées par l'alternance de la rosée, de la pluie et du soleil. Sous l'action de l'humidité et de la chaleur, plusieurs genres de champignons et de bactéries se développent sur les tiges. Jusqu'à 15 genres différents de champignons peuvent être retrouvés e.g. *Cladosporium herbarum*, *Eppicocum nigrum* ainsi que des bactéries aérobies en moindre mesure. Ces microorganismes produisent des enzymes responsables de la dégradation des polysaccharides.



Figure 20 Andains de lin en cours de rouissage au champ. (a) Lin vert après l'arrachage. (b) Lin en fin de rouissage.

Brown et Sharma (1984) ont relié l'augmentation de l'activité enzymatique à l'augmentation des colonies de champignons. Les enzymes produites sont des polygalacturonases, pectin-lyases, xylanases, mannases, cellulases (Henriksson et al., 1997; Sharma et al., 1992).

Sharma (1986) a étudié l'activité enzymatique sur des tiges de lin en cours de rouissage. Les enzymes produites sont d'abord en majorité des polygalacturonases, pectin-lyases et xylanases (paroi primaire). Leurs activités atteignent un maximum pour 22 jours de rouissage (170 $\mu\text{g/mL/h}$) puis diminuaient. Après 8 jours, l'activité des cellulases débute et augmente pour atteindre un maximum de 100 $\mu\text{g/mL/h}$ le 28^e jour puis était stable jusqu'à la fin du test. Des essais in vitro sur des tiges de lin ont montré qu'*Eppicocum nigrum* avait un plus fort potentiel de production de cellulases et pouvait être responsable de la dégradation de la cellulose (Sharma et al., 1992). Au bout d'un certain temps de rouissage, la production importante de cellulases entraîne donc la dégradation de la cellulose contenue dans les fibres et une diminution des rendements en paille (Pallesen, 1996).

La durée du rouissage varie de 3 à 8 semaines (Van Sumere, 1992), elle dépend des conditions météorologiques et est établie à l'appréciation des agriculteurs. Par ailleurs, la rapidité du rouissage n'est pas uniquement liée à l'activité des enzymes produit par les microorganismes mais aussi à la quantité de pectines à dégrader (Brown et al., 1986) et donc la quantité de paille par m^2 déposée sur le champ. L'épaisseur des andains de paille doit donc être régulière afin de permettre un rouissage homogène.

L'étape de rouissage est essentielle afin d'assurer une décortication efficace des tiges de lin, bien qu'elle représente un risque majeur pour la survie de la récolte, de par sa dépendance aux conditions météorologiques. En effet, le ramassage de pailles humides est

impossible et entraîne un pourrissement. En conséquence, un compromis entre rendements et qualité des fibres est nécessaire. Le rouissage doit donc être suivi avec beaucoup de précaution afin de déterminer le stade optimal de rouissage et le moment de la récolte, ce qui nécessite beaucoup d'expérience.

4.2.3. Rouissage chimique et enzymatique

Suite à l'interdiction du rouissage à l'eau et afin de pallier aux difficultés du rouissage au champ, d'autres méthodes de rouissage ont été développées. Pour le rouissage chimique, les produits utilisés dans les travaux de la littérature sont variés. Des chélateurs des ions calcium comme l'acide éthylène diamine tétra acétique (EDTA) sont surtout utilisés (Sharma, 1988). L'application est réalisée dans le but d'éliminer les complexes de calcium présents dans les lamelles mitoyennes des plantes.

Le rouissage enzymatique consiste à immerger les pailles de lin dans une solution d'enzymes (Akin et al., 2001; Van Sumere, 1992). Les mécanismes de rouissage sont identiques au rouissage au champ ou à l'eau. Ces deux types de rouissage n'ont pas été développés à l'échelle industrielle en France, à ce jour.

4.2.4. Autres méthodes de séparation des fibres de la tige

D'autres méthodes ont été évaluées afin de pouvoir faciliter la séparation des faisceaux de fibres des autres constituants de la tige. Il s'agit de méthodes physiques. On retrouve le procédé d'explosion à la vapeur (STEX) (Kessler et al., 1998; Sotton et Ferrari, 1991), les traitements ultrasons, et les traitements micro-ondes (Nair et al., 2014; Raveendran Nair et al., 2013).

4.2.5. Conséquence du rouissage sur la structure et la composition de la plante

4.2.5.1. Modification de la composition chimique

De par l'action enzymatique, le rouissage entraîne une modification de la composition biochimique de la plante.

Meijer et al. (1995) ont mis en évidence la diminution de la quantité de pectines contenues dans les pailles de lin au cours du rouissage. La proportion diminuait de 3 % à 1%. Par ailleurs, Rosemberg et De França (1967) ont mis en évidence le relargage d'acide

galacturonique lors du rouissage à l'eau tiède de tiges de lin. Le taux d'acide galacturonique augmentait au cours du rouissage.

Les travaux de Pallesen (1996) montrent une augmentation de la proportion de cellulose des fibres de lin avec le degré de rouissage, de 70 à 76%.

Akin et al. (1996) ont étudié en détail la composition biochimique de tiges et de fibres de lin rouies et non rouies (variété Ariane) à l'aide de l'analyse des sucres contenus dans les fibres par chromatographie. Pour les tiges, le rouissage diminuait la quantité de polysaccharides, mais ne diminuait pas la proportion de composés phénoliques. Pour les fibres, les proportions d'acide uronique, rhamnose, arabinose et xylose diminuaient et les proportions de mannose, galactose et glucose augmentaient avec le rouissage. Le ratio cellulose sur polysaccharides non cellulosique (rhamnose, arabinose, xylose, mannose et galactose) passait de 4,2:1 à 6,9:1. Les proportions de composés phénoliques diminuaient jusqu'à l'état de traces pour les fibres. Les composés phénoliques des fibres non rouies provenaient donc de résidus d'écorce et de xylème.

Mooney et al. (2001) ont également étudié la composition biochimique de fibres de lin rouies et non rouies (variété Belinka) à l'aide d'extractions chimiques successives des fibres et analyse des fractions extraites par chromatographie. Ces travaux ont mis en évidence un changement significatif de la composition en polymères pectiques et hemicellulosiques. Les fibres rouies possédaient une plus faible proportion de rhamnogalacturonan (pectine), d'arabinane et de xylane (hemicelluloses). La perte totale de polysaccharide entraînée par le rouissage est estimée à plus de 3 %. Par ailleurs, le rouissage diminuait la masse molaire des polymères pectiques extrait par des chélateurs, ce qui est donc synonyme d'hydrolyse des chaînes ou de coupure dans les ramifications des pectines. L'extraction par un chélateur (oxalate d'ammonium) a permis de montrer que le rouissage dégradait préférentiellement des rhamnogalacturonanes au détriment des homogalacturonanes.

Dans l'étude d'Akin et al. (1996) et celle de Mooney et al. (2001), la proportion de glucose n'est pas diminuée, ce qui laisse à penser que le rouissage n'a pas attaqué la cellulose des fibres.

4.2.5.2. Modification de la cristallinité des fibres

Des travaux de la littérature rapportent une augmentation de la cristallinité de fibres végétales au cours du rouissage, grâce à des mesures de l'indice de cristallinité par diffraction des rayons X (Segal et al., 1959).

Zafeiropoulos et al. (2001) rapportent une évolution de 64,55 % à 71,64 % de l'indice de cristallinité entre du lin vert et du lin roui au champ. Dans ces travaux, la durée de rouissage n'est pas indiquée.

Li et al. (2009) ont étudié l'évolution de l'indice de cristallinité entre des fibres de chanvre vert, et roui une et deux semaines en atmosphère humide dans des sacs hermétiques. L'indice de cristallinité évoluait respectivement de 66 % pour du chanvre vert à 85% pour du chanvre roui.

Les travaux de doctorat de Marrot (2014) rapportent une augmentation du taux de cristallinité de fibres de chanvre suite au rouissage au champ de la plante. L'indice de cristallinité évoluait de 45,8 % pour le chanvre vert, à 71,3 %, 71,2% et 74,5 % après respectivement 14, 31 et 45 jours de rouissage au sol.

4.2.5.3. Propriétés mécaniques en traction des fibres unitaires

Plusieurs études ont été publiées au sujet des propriétés mécaniques des fibres de lin en fonction de la durée de rouissage, cependant, les différents résultats ne font pas consensus.

Van de Weyenberg et al. (2003) présentent des propriétés mécaniques de faisceaux de fibres pour des lins verts, demi rouis et rouis, les contraintes à rupture sont respectivement 68,9 ; 72,8 et 71 cN.tex⁻¹.

Van de Velde et Baetens (2001) ont étudié les propriétés en traction de faisceaux de fibres de lin pour plusieurs degrés de rouissage. La contrainte à rupture était plus faible pour le premier niveau de rouissage. Alix et al. (2012) rapportent des propriétés mécaniques en traction équivalentes entre des faisceaux issus de lin vert et de lin roui. Les mêmes conclusions sont faites pour les propriétés des fibres unitaires.

Les travaux de Pillin et al. (2011) ont comparés l'influence de 2 degrés de rouissage sur les propriétés mécaniques de fibres unitaires de lin provenant de lin oléagineux. Les valeurs de contraintes à rupture et module d'Young étaient plus élevées pour les fibres de lin les plus rouies mais considérées équivalentes étant donné les écart-type élevés.

Li et al. (2009) rapportent une diminution importante des propriétés mécaniques en traction de fibres élémentaires de chanvre après un rouissage en sacs hermétiques. La contrainte à rupture des fibres était respectivement de 666 MPa, 402 MPa et 342 MPa pour des fibres brutes et rouies une et deux semaines. Les auteurs expliquent ce phénomène par une possible dégradation de la cellulose des fibres.

4.2.5.4. Etat de division des faisceaux

Il existe peu d'études dans la littérature traitant de l'évaluation de la division des faisceaux suite au rouissage. Van de Weyenberg et al. (2003) notent une augmentation de la finesse des faisceaux de fibres au cours du rouissage à l'aide de mesure par Airflow (méthode perméamétrique). Kessler et al. (1998) mettent en évidence la division de faisceaux de fibres de lin à l'aide d'observations par microscopie, cependant, la division n'est pas quantifiée (Figure 21).

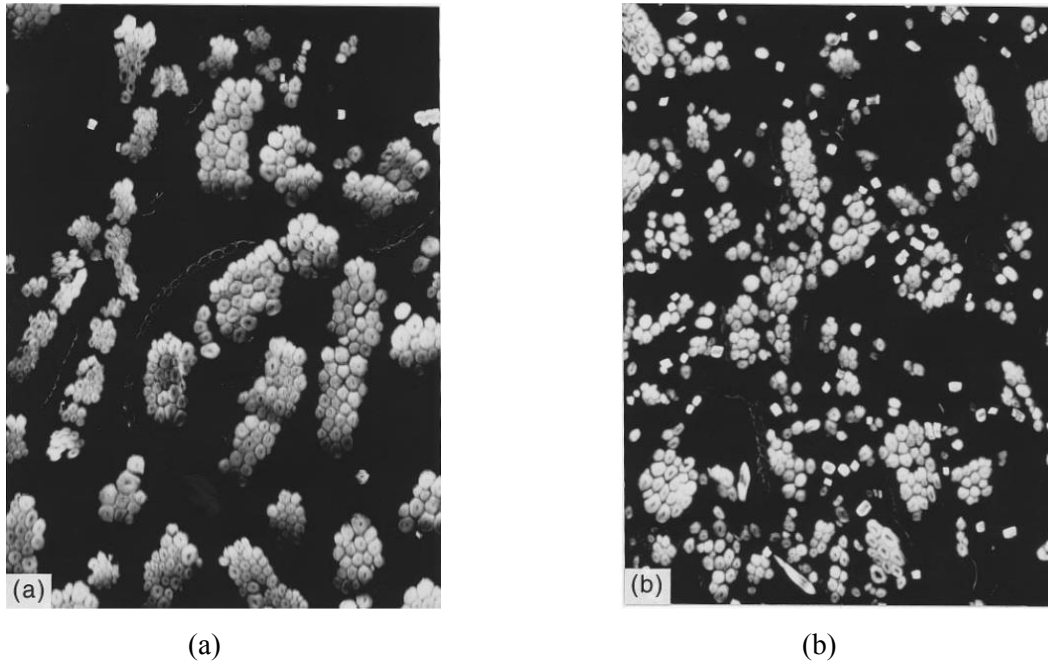


Figure 21 Illustration de la division des faisceaux avant et après rouissage et teillage (Kessler et al., 1998)

4.2.5.5. Capacité de sorption d'eau des fibres

Comme abordé plus haut, les fibres végétales possèdent une certaine quantité d'eau sorbée qui varie avec l'hygrométrie. Bismarck et al. (2002) ont étudié la sorption d'eau de fibres de lin vert et roui pour une humidité relative de 100 %. Le lin roui et le lin vert contenait respectivement 26,6 % et 42,6 % d'eau. Kymäläinen et al. (2004) ont également étudié la capacité de sorption entre du lin vert et du lin roui. Pour 92 % d'humidité relative, le lin vert contient 21,8 % d'eau, le roui contient 17,6 % d'eau.

Alix et al. (2012), ont étudié la capacité de sorption d'eau de fibres de lin à par DVS (Differential Vapour Sorption). Ces travaux rapportent une sorption d'eau plus importante pour des fibres de lin roui une semaine par rapport à du lin roui 6 semaines, lorsque l'humidité relative est supérieure à 70 %. Les différences s'accroissent avec l'augmentation de l'humidité relative. Pour une humidité relative de 90 %, le lin roui contient environ 16 % d'eau et le lin

vert environ 24 % (Figure 22b). Pour une humidité relative de 50 %, les deux types de fibres contiennent la même quantité d'eau.

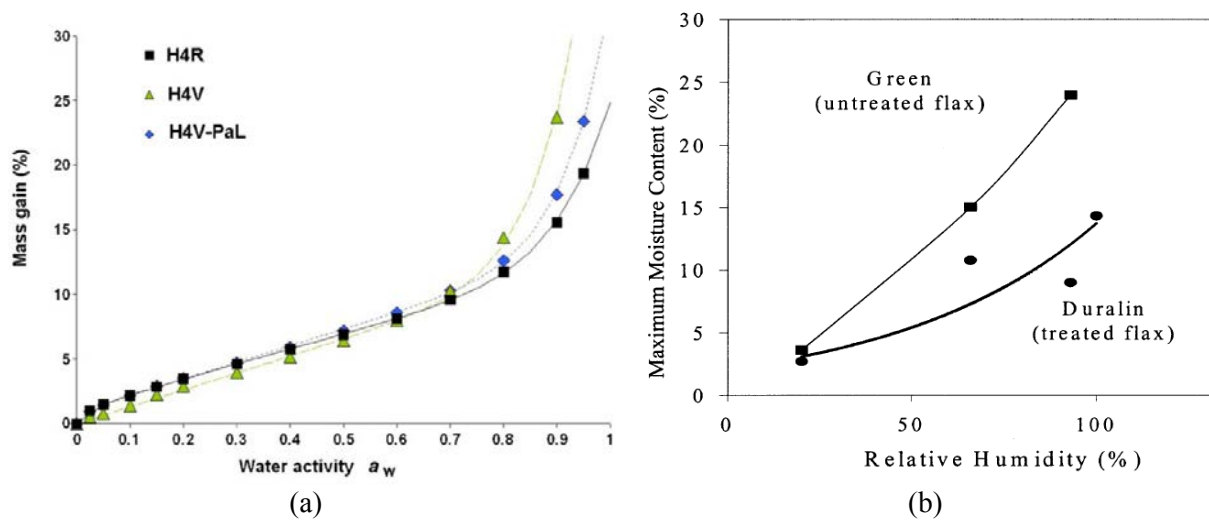


Figure 22 Evolution de la sorption d'eau de fibres de lin en fonction de l'humidité relative (a) (Alix et al., 2012) (b) (Alix et al., 2012) (Stamboulis et al., 2001).

Stamboulis et al. (2001) ont étudié la capacité de sorption d'eau de lin vert et de lin roui traité Duralin (traitement autoclave) pour plusieurs humidités relatives. La quantité d'eau contenue dans les fibres augmentait avec l'humidité relative et était plus importante pour les fibres de lin vert (Figure 22a). Cependant, le traitement Duralin entraîne déjà une modification de la capacité d'absorption d'eau par rapport à du lin roui non traité.

4.2.6. Moyens d'évaluation du degré de rouissage

Malgré l'existence de nombreuses techniques plus ou moins précises pour évaluer le degré de rouissage du lin, sa quantification est délicate et reste une estimation.

Il est possible d'évaluer le rouissage avant teillage afin de décider de la date de récolte. Un test manuel permet d'évaluer la facilité à séparer les faisceaux de l'écorce et de la paille. Un autre test consiste à teiller quelque kg de paille puis à évaluer visuellement la qualité de la filasse obtenue. Le test de Fried permet d'évaluer la facilité de séparation des fibres. Il consiste à disposer des échantillons de pailles dans un tube à essai rempli d'eau et à évaluer la séparation des faisceaux de fibres après agitation (Van Sumere, 1992).

D'autres auteurs (Booth et al., 2004a; Goodman et al., 2002) proposent d'évaluer le degré de rouissage de tiges de lin en mesurant la force de cohésion entre les faisceaux de

fibres et l'épiderme. Les travaux de Booth et al. (2004) ont par ailleurs montré la diminution du travail nécessaire pour peler l'épiderme.

Des méthodes organoleptiques sont utilisées par les producteurs de lin pour évaluer le rouissage après teillage. La finesse est appréciée en observant le degré de division des faisceaux après une traction manuelle. La couleur est également un bon indicateur du degré de rouissage. En effet, suite à la colonisation des pailles par les champignons, la couleur de celles-ci change, elle passe du jaune au gris foncé (Pallesen, 1996).

D'autres méthodes de mesure du degré de rouissage sont rapportées dans la littérature. Celles-ci font appel à des instruments de mesure et donnent des informations quantitatives.

Le degré de rouissage peut être évalué par mesure du contenu en acide polygalacturonique (le constituant majoritaire des pectines), ou une analyse complète des sucres (Mooney et al., 2001). Ces méthodes sont précises, mais fastidieuses.

Des méthodes employées dans l'industrie, comme l'airflow (Kessler et al., 1998; Meijer et al., 1995; Sharma et al., 1999) ou l'analyseur shirley (Meijer et al., 1995; Van de Weyenberg et al., 2003) donnent respectivement une valeur de finesse normalisée et de propreté des fibres. L'airflow est une méthode perméamétrique, l'analyseur Shirley permet de déterminer une fraction de déchets (van Langenhove et Bruggemen, 1992)

L'analyse thermogravimétrique (ATG) (Sharma et al., 1999; Sharma et Faughey, 1999; Van de Velde et Baetens, 2001) et la spectroscopie infrarouge ont aussi été utilisées pour quantifier le degré de rouissage (Di Candilo et al., 2000; Kessler et al., 1998). D'autres méthodes comme la nanoindentation, la sorption d'eau, ou des extractions chimiques (Alix et al., 2012) ont également été utilisées afin de caractériser le degré de rouissage.

4.3. Extraction des fibres et préparation pour les différents débouchés

Après arrachage et rouissage, les pailles de lin sont décortiquées afin d'en extraire les fibres. Aujourd'hui des lignes mécanisées, appelées lignes de teillage, sont utilisées. Elles nécessitent une intervention d'opérateurs uniquement en entrée et sortie de ligne. Historiquement, jusqu'au 19^e siècle, le lin textile était entièrement décortiqué à la main à l'aide d'outils rudimentaires. Les techniques de teillage ont évoluées au cours des siècles mais conservent des points communs avec les anciennes techniques manuelles. Le produit principal du teillage est le lin teillé appelé aussi fibres longues, long brin et le plus souvent filasse. Des coproduits sont générés en parallèle, il s'agit des graines, des anas et des étoupes.

4.3.1. Eléments d'histoire du teillage de lin

Les informations utilisées pour réaliser cette partie historique sont principalement tirées de deux ouvrages: (Pringle, 1953) et (Leseigneur, 1987). Une fois roui et séché le lin subissait deux opérations complémentaires l'une de l'autre : le broyage consistant à fragmenter les parties ligneuses (anas), puis le battage consistant à séparer les fibres des anas.

4.3.1.1. Broyage

La paille était à l'origine épandue sur le sol, puis écrasée et battue avec un maillet. Ce type d'outil était utilisé jusqu'en 1900 environ. Cette opération était longue et très pénible.

Par la suite, un instrument appelé la broie à main a été employé (Figure 23a). C'est un outil qui ressemble à une paire de ciseaux de grande taille, composé de deux parties, une fixe et une mobile. Une poignée de paille est placée sur la partie fixe, puis elle est broyée par appui répété de la partie mobile contre la partie fixe. Certains modèles étaient munis d'un siège, rendant ainsi la tâche moins pénible.



(a)



(b)

Figure 23 Photographie d'un maillet et d'une broie à main (a) et d'un moulin flamand (b).

Au milieu du 19^e siècle, l'invention de la broyeuse à rouleau fut le premier pas vers l'industrialisation. La paille était introduite entre deux rouleaux cannelés superposés, actionnés par une manivelle. Au début les rouleaux étaient en bois, puis par la suite en métal.

4.3.1.2. Battage

Le premier outil utilisé pour le battage est la "planche à teiller" ou "à écanguer". C'est une planche placée debout possédant une entaille dans sa partie supérieure. La paille broyée était placée dans l'entaille, avec un côté pendant et l'autre partie tenue par la main. L'opérateur battait ensuite la paille à l'aide d'une lame de bois jusqu'à ce que tous les anas tombent. L'opération était répétée dans l'autre sens. La finition était réalisée à l'aide d'un peigne en bois. Cette opération était considérée comme un art plutôt qu'une technique, car elle demandait un grand savoir-faire pour être exécutée correctement.

L'apparition du moulin flamand (Figure 23b) vers 1860 marque un renouveau dans l'évolution mécanique du teillage. C'est le développement logique du teillage manuel vers les procédés mécaniques. C'est une roue munie de huit à douze couteaux de bois (Figure 23b). L'entraînement s'effectuait d'abord à l'aide d'une manivelle, puis d'une pédale, puis de deux. La fréquence des coups est ainsi plus élevée et l'opérateur a ses deux mains libres pour la manipulation du lin. Ce système permettait d'augmenter le rendement horaire. Un ouvrier travaillant douze heures par jour avait un rendement de 8 à 12 kg de lin teillé. Le début de l'utilisation des moulins flamands marque la transformation du teillage artisanal en sites de production industriels. A la fin de l'utilisation des moulins flamands, ceux-ci étaient entraînés par des machines à vapeur. Plusieurs moulins étaient entraînés par un même axe.

4.3.2. Le teillage moderne

Dès la fin de la première guerre mondiale, des recherches sont entreprises afin de teiller le lin sur des lignes de production mécanisées. Les premières lignes de teillage apparaissent vers 1925. La matière était transportée par des courroies. Ces machines combinaient à la fois le broyage et le battage sans rupture de charge ce qui était une révolution. Elles pouvaient décortiquer de 400 à 500 kg de paille par heure. Contrairement au teillage manuel, les batteurs automatiques entraînent l'arrachage d'une certaine quantité de fibres: les étoupes. Ces fibres ne peuvent pas être valorisées comme la filasse dans le textile et représentent un coproduit dont il faut minimiser la production.

4.3.2.1. Principe de fonctionnement d'une teilleuse

La production de filasse

Le teillage est la première transformation subie par les tiges de lin. Les lignes utilisées actuellement sont toujours conçues sur le principe des premières teilleuses, avec en plus, des améliorations techniques permettant d'augmenter les rendements. La description du teillage effectuée ci-après s'inspire de trois ouvrages (Bert, 2013; Salmon-Minotte, 2005; Sultana, 1992b).

La Figure 25 présente un schéma de principe d'une ligne de teillage actuelle. La ligne est subdivisée en plusieurs parties. Dans l'ordre de la ligne, on retrouve le tapis de déroulage et de préparation, le système d'égrainage, les diviseurs, les broyeurs, le batteur pied, le batteur tête, la zone de tri et l'enroulage.

Tout d'abord, les bottes de paille sont amenées à l'entrée de la ligne par manutention soit par un opérateur, soit à l'aide de systèmes d'alimentation automatisés. La botte de paille est déroulée et étalée sur le tapis de chargement afin de former une nappe homogène d'environ 2,5 à 3 kg par mètre linéaire. Cette étape permet également d'éliminer tous les objets étrangers tels que des pierres ou des déchets plastiques. Les tiges de lin sont disposées perpendiculairement à la direction de la ligne. Tout au long du processus, l'orientation du lin reste perpendiculaire à la direction du flux de matière.

Ensuite les pailles sont acheminées vers l'égraineuse où les capsules de graines sont retirées par un peigne rotatif.

A la suite, une unité appelée diviseur réduit et homogénéise l'épaisseur de la nappe de tiges (250 à 500 g.m⁻²) en augmentant la vitesse d'avance de la matière pour atteindre 60 à 100 m/min. La nappe divisée est saisie entre deux courroies pour alimenter le système de broyage.

Les tiges passent entre une série de rouleaux cannelés. Ces rouleaux permettent de briser le bois du lin (xylème) présent au centre de la tige. Il existe plusieurs profils de rouleaux avec un nombre de dents variable. Les particules de bois (les anas) tombent dans une trémie aspirante placée sous les broyeurs.



Figure 24 Système de broyage à rouleaux cannelés (a) et système de battage (b).

Les tiges broyées sont saisies entre un autre jeu de courroies pour être ensuite introduites dans l'unité de battage (aussi appelé écangage). On parle également de turbines dans le jargon linier. Les batteurs se présentent sous la forme de tambours de plusieurs mètres de longueur et d'un diamètre d'environ 1 m, munis de plusieurs lames en acier. Les matières passent entre deux tambours effectuant un mouvement contra-rotatif qui permet de gratter le lin et retirer les anas. L'opération est effectuée successivement du côté pied et du côté tête. La vitesse de rotation des batteurs est de 150 à 250 t.min^{-1} . Durant le battage, des faisceaux de fibres peuvent être arrachés, créant ainsi les étoupes. Sous les batteurs, les étoupes tombent dans un circuit d'aspiration et sont collectées.

Tiges de lin rouies

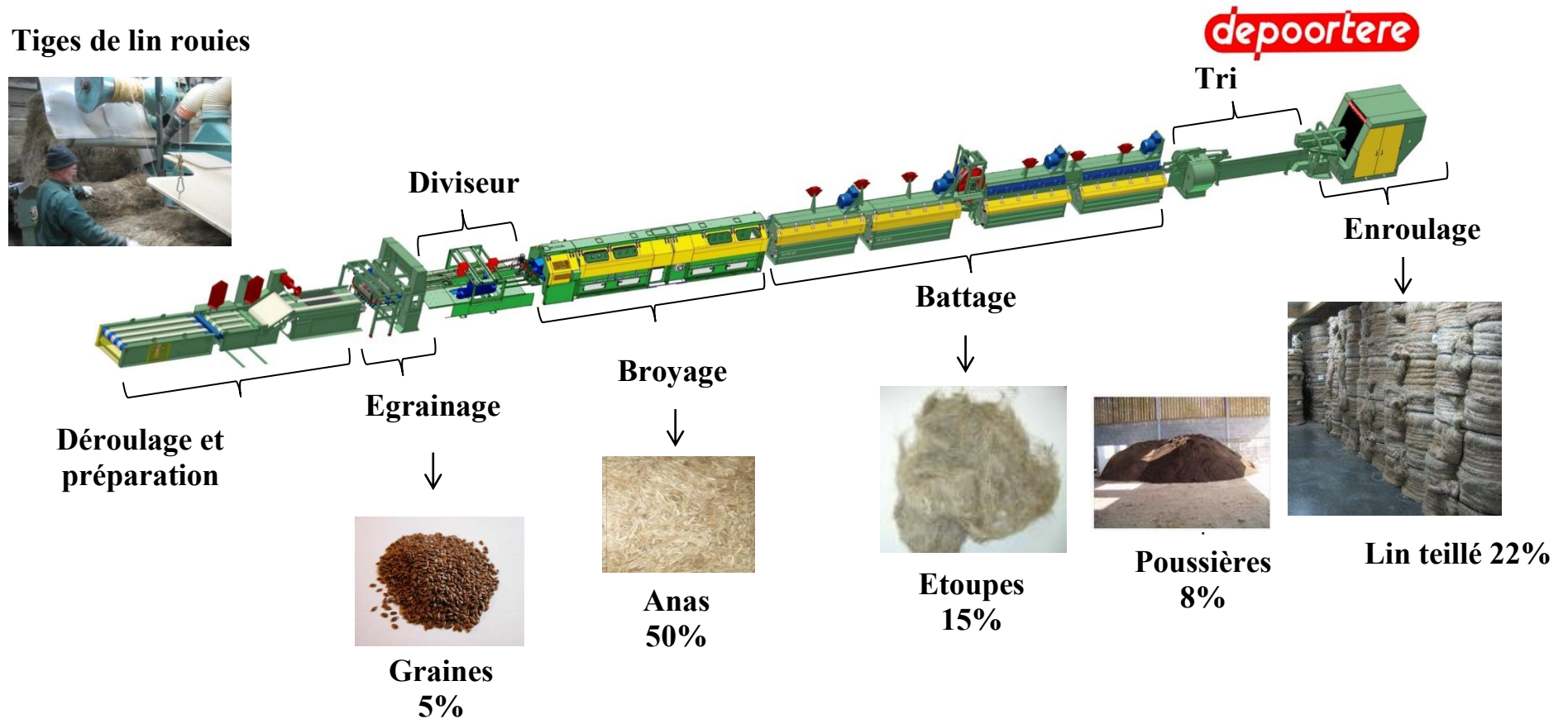


Figure 25 Schéma d'une ligne de teillage (Adapté d'un document Depoortere). Produits et coproduits issus de la décortication des pailles de lin (Bert, 2013).

En sortie de batteur tête, le lin teillé est délivré par la courroie sur une barre horizontale et est trié par un opérateur afin de retirer les zones contenant des anas ou des défauts (couleur différente). Enfin, la filasse est enroulée automatiquement sous forme de balle ronde d'une centaine de kilos. Avant le développement des enrouleuses, le lin était conditionné manuellement par poignée de 500g et pressé par balle de 100 kg. Le débit horaire des teilleuses moderne peut aller jusqu'à plus de 2500 kg de paille par heure, soit 500 kg de filasse pour un rendement de 20% (Lefeuvre et al., 2013).

Le rendement et le rendu du teillage dépend de nombreux paramètres tel que le degré et l'homogénéité de rouissage, la qualité de l'enroulage lors de la récolte et l'alignement des pailles en entrée de teillage. Trois paramètres sont réglables sur les lignes: l'épaisseur de la nappe de paille, la vitesse d'avance de la ligne et la vitesse de rotation des batteurs. Ces réglages sont variables et adaptés pour chaque lot de paille en fonction de l'état de la matière et en suivant le savoir-faire des opérateurs. L'objectif du teilleur de lin est donc d'adapter les réglages de teillage de manière à pouvoir extraire le maximum de fibres longues, propres et divisées, en créant le minimum d'étoupes.

Le teillage des étoupes

Les étoupes générées par le battage du lin sont récupérées et subissent des opérations de nettoyage en parallèle afin de retirer les anas qu'elles contiennent. La ligne de nettoyage d'étoupes est couplée à la ligne de teillage. Cette ligne débute généralement par deux secoueurs qui permettent de faire tomber les anas. Par la suite les étoupes passent dans une succession de cardes briseuses et de secoueurs. Le nombre de passages de cardes et de secoueurs conditionne la propreté des étoupes.

Le teillage toutes fibres ou lin total

Dans le cas de lin sous roui ou de paille de mauvaise qualité (lin versé, mal enroulé, etc...), le teillage toutes fibres peut être utilisé. Ce procédé était prévu à la base pour teiller la paille en vrac. Il n'y a ici pas de séparation entre filasse et étoupes. Ce processus consiste à briser les tiges par une série de rouleaux puis à séparer les fibres des anas à l'aide de secoueurs et de cardes briseuses à la manière du teillage d'étoupes. Le produit obtenu en fin de processus est similaire aux étoupes de teillage. L'utilisation de ce type de décortication est peu répandue.

4.3.2.2. La seconde transformation

Après l'étape de teillage, la filasse ou les étoupes peuvent être retravaillées en fonction du débouché. La filasse peut-être peignée pour aligner et diviser les faisceaux en vue de la filature textile. Les étoupes peuvent être démêlées et nettoyées par cardage puis coupées afin d'être utilisées pour la fabrication de non-tissés. Enfin la filasse ou les étoupes peuvent être affinées afin d'obtenir des produits très fins à destination du textile. L'organisation de la seconde transformation du lin est décrite par la Figure 26.

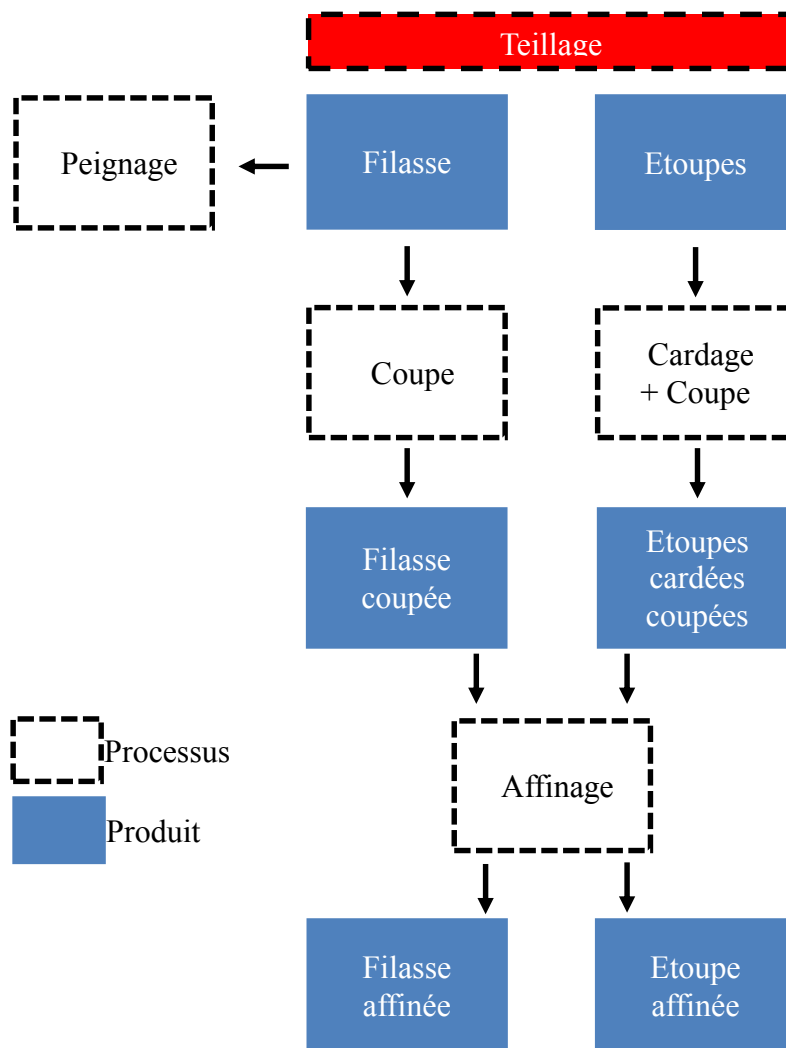


Figure 26 Schéma d'organisation de la seconde transformation du lin.

Peignage

Salmon-Minotte (2005) a décrit le processus de peignage. Le but du peignage est d'aligner, démêler et paralléliser les faisceaux de fibres, ainsi que de retirer toute matière indésirable comme des anas ou des graines. Dans une certaine mesure, le peignage permet de

diviser les fibres au sein des faisceaux (Coroller et al., 2013). Après peignage, les fibres sont sous la forme d'un ruban qui a l'avantage d'être continu par rapport à la filasse qui est discontinue. Le rendement de peignage est inférieur à 70% (Le Duigou et al., 2011) et la vitesse de production peut atteindre 120 kg.h⁻¹, ce qui en fait un processus relativement couteux. Les rubans sont utilisés pour la filature ou pour la réalisation de préformes à destination des composites.

Affinage

L'affinage du lin a été développé pour la filature cardée afin que les fibres soient suffisamment fines et courtes pour être mélangées avec d'autres fibres, soit du coton ou des fibres synthétiques (Salmon-Minotte, 2005). Le processus consiste à couper les fibres à la longueur nécessaire, puis celles-ci sont passées à travers une série d'ouvreuses munies de pointes de plus en plus fine, qui permettent de diviser les faisceaux de fibres. Une ouvreuse est un type de machine textile comportant un rouleau garni de pointes permettant d'ouvrir et diviser la matière. Les fibres sont convoyées par aspiration ce qui permet de les dépoussiérer.

4.3.2.3. Création d'un produit principal et d'un ensemble de co-produits

La production industrielle de fibres de lin donne naissance à un produit principal, la filasse, et à une série de coproduits: les étoupes, les anas, les graines et la poussière (Figure 25). L'ensemble de ces coproduits est valorisé. Le Tableau 3 donne les proportions des coproduits.

Référence	Filasse (%)	Etoupes (%)	Anas (%)	Graines (%)	Poussière(%)
(Bert, 2013)	22	15	50	5	8
(ADEME/FRD, 2011)	15-25	10-15	45-50	5-8	10
(Le Duigou et al., 2011)	23,5	13,5	48,5	5,5	10
Données internes Van Robaeys	19	13	61,5 (avec poussière)	6,22	/

Tableau 3 Rendement en produit et coproduits issus du teillage de la paille de lin.

Le lin teillé ou filasse

La filasse est le produit principal, elle est historiquement et encore aujourd'hui principalement valorisée pour la filature peignée, à destination du textile pour la réalisation de fils et de tissus destinés à la confection. Les fils sont utilisés pour la fabrication de vêtements,

mais aussi pour la réalisation de renforts de composites. Les rubans peignés peuvent être directement utilisés pour la réalisation de renforts unidirectionnels ou tissés, avec absence de filature.

Les étoupes

Les étoupes sont aussi appelées fibres courtes. Pour le textile traditionnel, les étoupes peuvent être utilisées après cardage, pure ou en mélange avec d'autres fibres. Les fibres grossières sont valorisées dans l'industrie papetière ou en corderie. Les étoupes sont aussi utilisées pour la fabrication de préformes non-tissées, pour le renforcement de composites ou d'isolants thermiques.

Les anas

Les anas sont utilisés pour la fabrication de panneaux de particules, pour des litières, du paillage, et en tant que combustible. Ils peuvent être associés à un liant inorganique pour former un enduit pour le secteur du bâtiment.

Les graines

Dans la plupart des cas les graines de lin textile sont réutilisées comme semences. Elles sont aussi utilisées pour leur huile et pour l'alimentation animale

Poussière

La poussière est utilisée pour l'amendement organique des champs.

4.3.2.4. Différences entre la filasse et les étoupes

La filasse et les étoupes possèdent une apparence visuelle différente. Suite à la première transformation, les étoupes sont composées de fibres entremêlées, contenant des résidus de bois, les anas, tandis que la filasse est alignée et propre. Les longueurs des étoupes rapportées dans la littérature sont de 30 cm (Van de Weyenberg et al., 2003) ou inférieures à 50 cm (Batra, 1985). La filasse peut mesurer toute la longueur de la tige soit jusqu'à 1 m. La valorisation économique des deux produits est différente. Selon les cours du lin (mars 2014), les prix de vente de la filasse et des étoupes sont respectivement de 1,7 €/kg et 0,7 €/kg. Les étoupes sont indésirables mais inévitables, car étant intrinsèques au processus actuellement utilisé pour le teillage des plantes.

Au niveau des propriétés mécaniques des fibres, Andersons et al. (2009b) ont comparé les propriétés en traction et le nombre de défauts de fibres élémentaires extraites de filasse et d'étoupes. Ces essais ont été réalisés sur des échantillons de fibres élémentaires dont la longueur libre était de 5 mm. Les résultats ont montré que la contrainte à rupture des fibres issues d'étoupes (860 ± 330 MPa) était plus élevée que celle de fibres issues de filasse (660 ± 330 MPa). Le nombre et l'écart entre les défauts était identique pour les deux types de fibres.

Van de Weyenberg et al. (2003) ont par ailleurs comparés les propriétés mécaniques de composites unidirectionnels lin/époxy renforcés par des rubans d'étoupe ou du lin teillé. Les matériaux réalisés à partir d'étoupes cardées possédaient une meilleure contrainte à rupture (+15 %) mais un module d'Young plus faible (-25 %) que les matériaux réalisés à partir de filasse.

Au vu des résultats de la littérature, il manque des données afin de pouvoir conclure sur les différences de propriétés mécaniques entre des filasses et des étoupes. Ce sujet sera étudié dans le chapitre IV.

4.3.2.5. Influence des étapes de transformation sur les défauts et les propriétés mécaniques des fibres

De nombreux travaux de la littérature mettent en garde le lecteur contre l'impact négatif des processus d'extraction et de nettoyage des fibres (teillage, peignage, cardage, affinage) sur les propriétés mécaniques de celles-ci. Les auteurs justifient ces affirmations en indiquant que les défauts (kink-band, genoux, dislocations) observables à la surface des fibres sont créés lors des étapes de transformation par des sollicitations de flexion et compression et fragilisent ainsi les fibres. La création de défauts sur des fibres vierges a pu être observée en étudiant la face en compression de fibres unitaires de lin au MEB lors de test mécaniques de boucles (Bos et al., 2002; Bos et Donald, 1999) ou compression ou flexion (Baley, 2004).

Bos et al. (2002) ont montré que la contrainte à rupture de fibres unitaires décortiquées à la main (1834 ± 900 MPa) était plus élevée que celle de fibres teillée et peignée (1522 ± 400 MPa).

Aslan et al. (2010) ont comparé les propriétés mécaniques de fibres unitaires provenant de lin teillé et d'étoupes de peignage. Ils ont mis en avant une chute importante de la contrainte à rupture et du module d'Young des fibres qui étaient respectivement de 1445 ± 553 MPa contre 812 ± 342 MPa et 52 ± 16 GPa contre 30 ± 11 GPa. Les défauts observés

étaient plus nombreux pour les fibres issues d'étoupes de peignage. Cependant, les auteurs ne précisent pas si les fibres proviennent du même lot de lin.

Thygesen et al. (2011) ont comparé les propriétés mécaniques en traction de faisceaux de fibres de lin après respectivement rouissage, teillage, cardage ; puis un affinage ; puis deux affinages. La résistance à la rupture des faisceaux diminuait avec les étapes de transformation. On pourrait penser que cette diminution des propriétés mécaniques est due à la fragilisation des lamelles mitoyennes à la suite des passages d'affinage.

Hänninen et al. (2012) ont étudié le nombre de défauts présents à la surface de fibres de lin. Les mesures ont été effectuées sur du lin vert, du lin roui, du lin roui teillé et cardé et du lin roui teillé, cardé et affiné. Le nombre de défauts par mm est respectivement de $17,3 \pm 2,0$ de $19,7 \pm 10,1$ de $27,6 \pm 5,5$ et de $30,8 \pm 4,7$. Suite au teillage et au cardage, le nombre de défauts augmente par rapport aux fibres décortiquées à la main. Les résultats indiquent que la largeur des défauts n'est pas affectée par les étapes de transformation, cependant au vu des observations au microscope (Figure 27), les zones de défauts semblent moins distantes pour les fibres ayant subi plusieurs processus mécaniques.

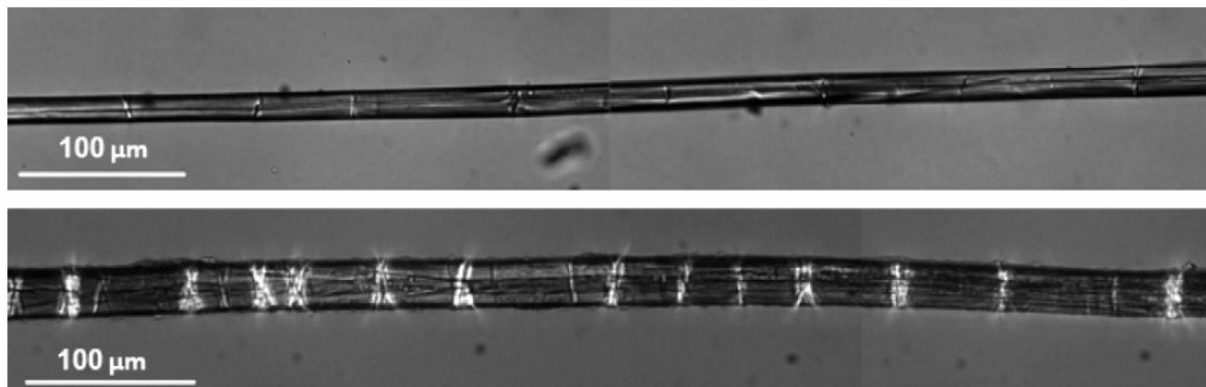


Figure 27 Images en lumière polarisée de deux types de lin: lin vert (haut) et après rouissage, teillage, cardage et affinage (bas). Les défauts sont visibles grâce aux lignes claires et sombres qui traversent les fibres (Hänninen et al., 2012).

En résumé, d'après les travaux présentés ci-avant, des défauts sont créés lors des étapes de transformation des fibres, s'ajoutant à ceux présent après la croissance. Ces défauts entraînent, d'après la littérature, un abattement des propriétés mécaniques des fibres.

4.4. Fabrication de non-tissés de fibres végétales

A l'instar des fibres synthétiques, les architectures de renforts en fibres de lin sont multiples. On peut distinguer les différents types de renfort en fonction de l'orientation et de la

longueur des fibres. Il existe des fibres courtes (<3 mm) pour une utilisation dans les compounds, des renforts tissés ou unidirectionnel réalisé à partir de fils ou de mèche de lin et des renforts non tissés.

La fabrication de renforts non tissés de fibres végétales est présentée dans les paragraphes qui suivent. Ce sujet sera abordé par la suite dans le chapitre V.

4.5. Définition générale d'un non-tissé

Le terme non-tissé englobe un vaste panel de matériaux et l'utilisation du terme ou non pour qualifier un matériau est parfois imprécise. Cependant, il existe une définition officielle décrite par la norme ISO 9092 publiée en 1988 puis révisée en 2011. La norme définit un non-tissé comme une "structure constituée de matières textiles, comme des fibres, des filaments continus ou des fils coupés, quelle qu'en soit la nature ou l'origine, formée en voile par un moyen quelconque, et liée par tout moyen, excluant l'entrelacement de fils comme dans une étoffe tissée, tricotée, en dentelle, tressée ou touffetée. Les structures film et papier ne sont pas considérées comme des non-tissés."

L'EDANA (European Disposables and Nonwoven Association) et l'INDA (Association nord-américaine l'industrie des non-tissés) propose la définition suivante: "Un non-tissé est une nappe de fibres, de filaments continus ou de fils coupés, de quelque nature ou origine, qui ont été formés en une nappe par un moyen quelconque, et liées entre elles par un moyen quelconque, à l'exception du tissage ou du tricotage. Les feutres obtenus par voie humide ne sont pas des non-tissés. Les voiles mis en œuvre par voie humide sont des non-tissés à condition qu'ils contiennent un minimum de 50% de fibres synthétiques ou artificielles ou d'autres fibres d'origine non végétale avec un rapport longueur sur diamètre supérieur ou égal à 300, ou un minimum de 30% de fibres synthétiques avec un rapport longueur sur diamètre supérieur ou égal à 600, et une densité apparente maximale de $0,40 \text{ g/cm}^3$. Les structures composites sont considérés comme des non-tissés à condition que leur masse soit constituée d'au moins 50% de non-tissé selon les définitions ci-dessus, ou si le composant non-tissé joue un rôle prépondérant".

Le terme "non-tissé" qui décrit ce que le produit n'est pas, donc opposé à ce que le produit est réellement, n'a jamais représenté précisément ce type de matériaux, cependant toutes les tentatives pour remplacer ce terme n'ont pas abouti (Russell, 2006).

Le marché des non-tissés est aussi vaste que le nombre de matériaux pouvant être englobés dans cette catégorie (Tableau 1) (Payen, 2013).

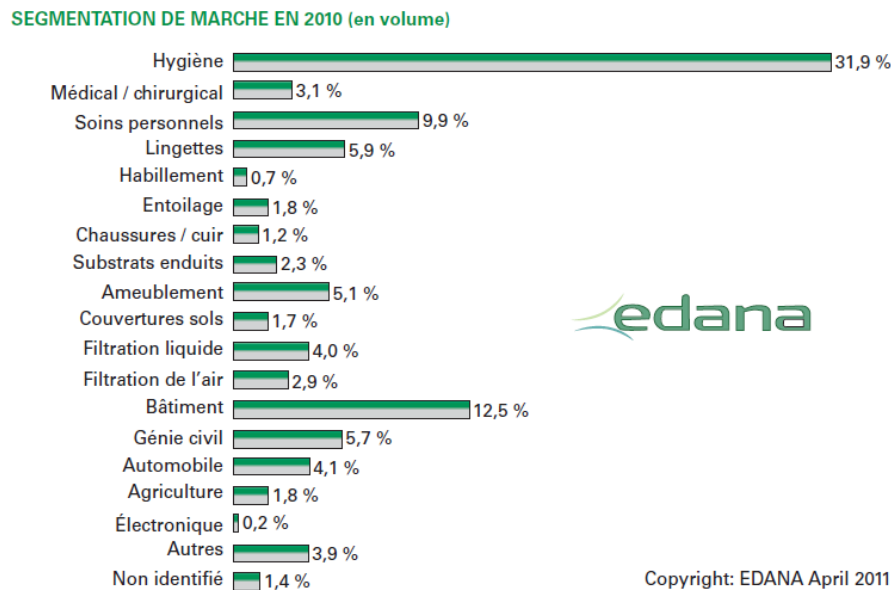


Figure 28 Segmentation en volume des marchés applicatifs du non-tissé (Payen, 2013).

4.6. Méthodes de production de non-tissé

Il existe de nombreuses méthodes de production de non-tissés et les techniques et conceptions de machines peuvent varier d'un fabriquant à l'autre. Cependant la méthode générale consiste à produire un voile puis à le consolider. Les descriptions de ce paragraphe donnent des informations générales pour la compréhension des processus de fabrication.

4.6.1. Méthode d'obtention du voile

A partir de fibres discontinues de quelques dizaines de millimètres, un voile de fibres peut être créé par:

- voie sèche (cardage),
- voie humide (*Wetlaid*)
- voie aérienne (*Airlaid*)

Les méthodes abordées ici sont utilisables avec des fibres végétales ou synthétiques, mais il existe également d'autres voies de mise en œuvre uniquement valables pour les fibres thermoplastiques (voie fondue). On abordera ci-après le cardage et le *Wetlaid*

4.6.1.1. Obtention du voile par voie sèche par cardage

Le cardage est une technique de base de l'industrie textile. Il permet d'aligner et éventuellement nettoyer des fibres discontinues afin de produire un ruban continu avant filature. L'invention du cardage remonte au temps préhistorique pour le nettoyage et l'alignement des fibres animales ou végétales. Il était à la base réalisé manuellement avec des bouquets de chardons (plante), puis par la suite des planches à carder.

Pour les non-tissés, le cardage permet de réaliser un voile par voie sèche à partir de fibres discontinues d'une longueur de 30 mm à 150 mm. Le but du cardage est de démêler, aligner et mélanger les fibres afin de produire un voile homogène et uniforme avec une masse surfacique constante. Il existe de nombreux types de cardes pour non-tissés, cependant le principe général est le même pour toutes.

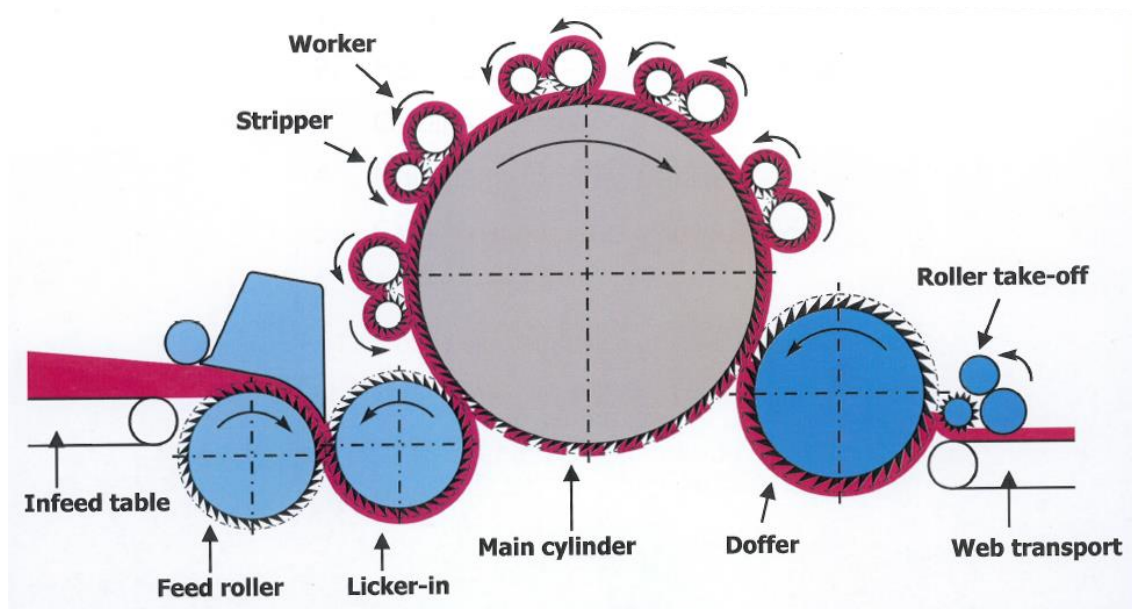


Figure 29 Schéma de principe du cardage. Vue en coupe. Adapté d'un document commercial DILO SPINNBAU GmbH .

La Figure 29 présente un schéma de principe du cardage. Une cardé est constituée d'un assemblage de rouleaux garnis de dents métallique. La partie centrale est constituée d'un cylindre principal (main cylinder), le plus grand, et de couples de plus petits rouleaux satellites appelés travailleurs et dépouilleurs (worker/stripper). Les fibres sont introduites et convoyées jusqu'à la zone de cardage proprement dite via des cylindres d'alimentation (feed roller, licker-in). Le cylindre principal est le cœur de la machine et distribue les fibres aux couples travailleurs-dépouilleurs. Ces derniers possèdent une fonction d'alignement et de mélange. Une certaine proportion de fibres, convoyée par le rouleau principal, est attrapée par

le rouleau travailleur et ensuite redéposée sur le rouleau principal par le rouleau dépouilleur. A la suite des séries de travailleur dépouilleurs, le cylindre peigneur (doffer) permet de récupérer les fibres sous la forme d'un voile, et un autre petit rouleau de retrait (roller take-off) dépose le voile sur un système de convoyage. Une partie des fibres cardées n'est pas récupérée par le cylindre peigneur et reste sur le cylindre principal, puis est mélangée avec les fibres brutes non cardées, et effectue un nouveau passage dans la carde. Ceci contribue à la capacité de mélange de la carde. A la suite du cardage, le voile de fibres est consolidé.

4.6.1.2. Voie humide *Wetlaid*

Ce procédé est inspiré du procédé utilisé pour la fabrication du papier. La Figure 30 présente un schéma de principe du procédé *wetlaid*. Les fibres sont mises en suspension dans l'eau puis diluées afin d'atteindre une faible concentration (0,1 à 0,25 % de fibres en masse). Cette pâte est déposée sur une toile métallique en mouvement et drainée pour former une nappe. La nappe est ensuite essorée, consolidée par pressage entre des rouleaux, et séchée. La vitesse de production du voile peut être supérieure à 500 m/min pour ce type de processus.

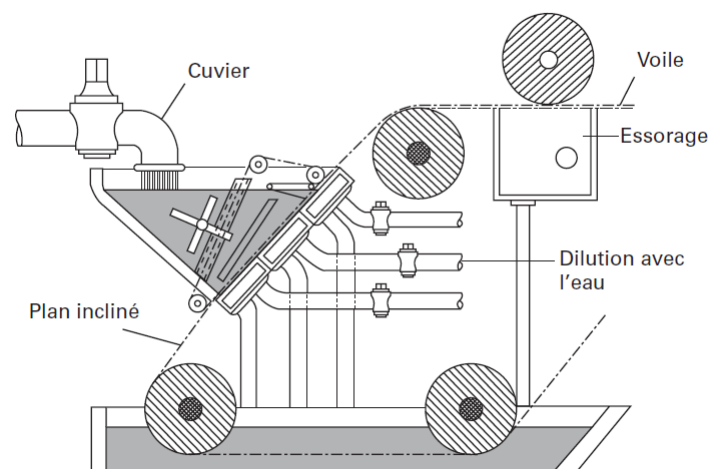


Figure 30 Schéma de principe du procédé *wetlaid*(Payen, 2013).

Dans le cas des non-tissés de fibres cellulosiques produits par voie humide, la cohésion du voile peut être assurée sans liants. L'affinité naturelle des fibres cellulosiques à former des liaisons hydrogènes entre les groupes hydroxyles présentes en surface des fibres permet de créer des liaisons faibles et donne une certaine cohésion au voile.

4.6.2. Technique de consolidation du voile

Quel que soit le procédé de fabrication du voile, celui-ci est consolidé afin d'apporter une cohésion à la structure. Les méthodes de consolidation peuvent être chimiques, mécaniques, ou thermiques.

4.6.2.1. Aiguilletage

Ce procédé permet de consolider un voile à l'aide d'aiguilles le transperçant. L'aiguilleteuse est équipée d'une planche où sont insérées une multitude d'aiguilles métalliques contenant des barbes accrochant les fibres (Figure 31a). Il existe un grand nombre d'aiguilles différentes qui, de par la forme des barbes, leur longueur et leur taille, influence la structure finale du non-tissé (Figure 32). La planche qui contient les aiguilles est entraînée dans un mouvement vertical du haut vers le bas et les aiguilles viennent transpercer la nappe pour enchevêtrer les fibres. Le non-tissé est retenu par une enclume et un déboureur qui sont percés de trous de diamètres légèrement supérieurs à ceux des aiguilles (Figure 31a).

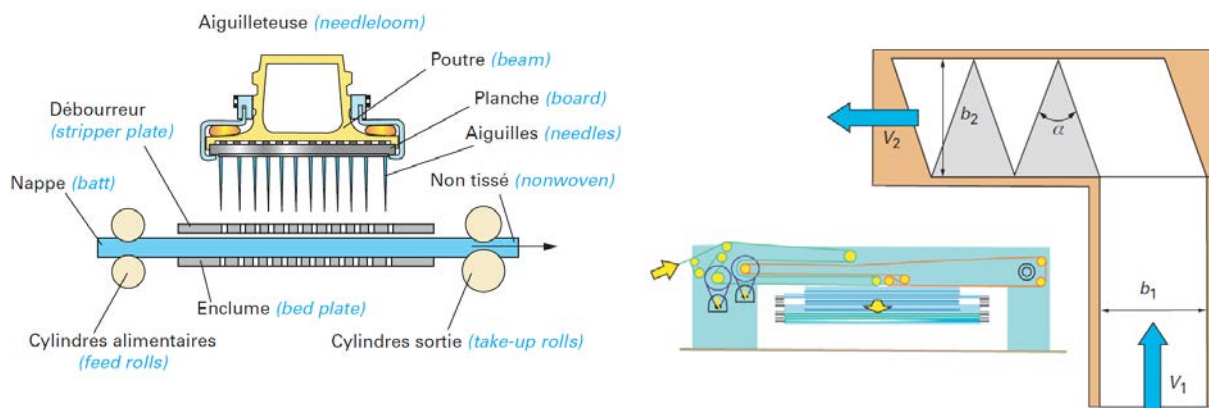


Figure 31 Schéma d'une aiguilleteuse (a) et d'un étaleur-nappeur (b) (Payen, 2013).

Avant aiguilletage et après cardage, le voile de fibres est nappé sur plusieurs couches afin d'augmenter la densité surfacique du non-tissé. La machine utilisée est un étaleur-nappeur (Figure 31b). Le voile entre dans le nappeur dans la direction V_1 . Le voile est étalé par couche successive par aller et retour du nappeur sur un tapis convoyeur se mouvant dans la direction perpendiculaire au voile entrant (V_2). En fonction de la largeur de nappage et de la vitesse d'avance du tapis, la direction machine du voile d'origine (sortie de carde) n'est pas parfaitement dans la direction transverse du voile nappé, mais possède un angle $\alpha/2$ avec la direction transverse (Figure 31b). Cet aspect est important à noter, lorsque les propriétés mécaniques sont évaluées en fonction de la direction du renfort aiguilleté.



Figure 32 Pointe d'une aiguille d'aiguilletage (Coste, 2014).

L'aiguilletage est une technique qui permet d'obtenir des vitesses de production ne dépassant pas les 20 m/min pour des largeurs de rouleau de 12 m.

4.6.2.2. Hydroliage

Le procédé d'hydroliage permet de consolider un voile de fibres à l'aide de jets d'eau haute pression. Le terme anglais est *hydroentanglement* ou *spunlace*. La Figure 33 est un schéma de principe de l'hydroliage. Dans le cas de la figure, deux voiles sont consolidés l'un contre l'autre. En sortie du procédé de formation du voile, celui-ci est déposé sur un élément support, qui peut être un cylindre perforé. Le voile est d'abord précompacté par une ligne de jets d'eau à une pression de quelques dizaines de bars, puis soumis à des jets d'eau d'une pression de 100-200 bars sur une face, puis sur l'autre. En général, plusieurs séries d'injecteurs sont placés à la suite des autres pour assurer une compaction maximale.

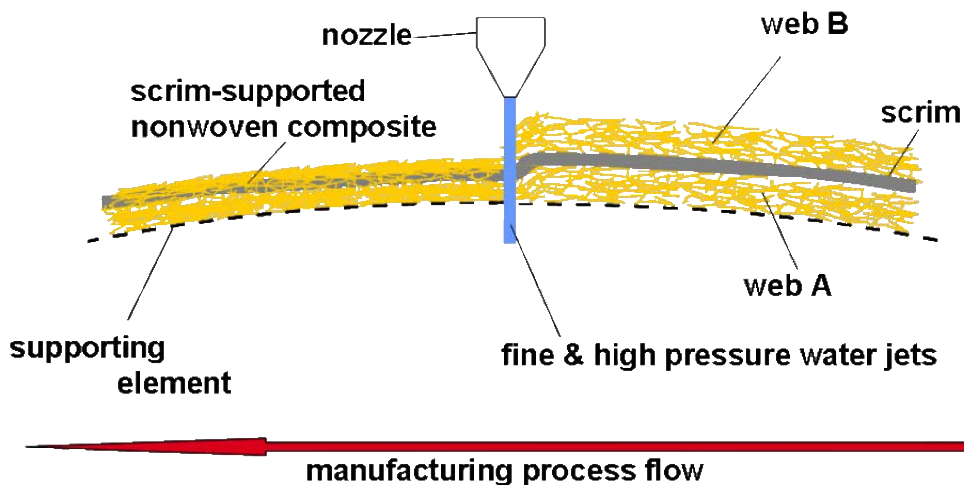


Figure 33 Schéma de principe de l'hydroliage. Document Norafin GmbH.

Les jets d'eau ne jouent pas le même rôle que les aiguilles lors de l'aiguilletage. Les fibres sont enchevêtrées et liées sous l'influence des jets d'eau incidents et surtout par les turbulences créées par l'eau au contact des fibres. Seule une partie de l'eau des jets traverse directement la grille sur laquelle repose le voile. Le reste du jet ricoche sur la grille, et une zone très turbulente se forme là où les eaux des jets voisins se mélangent (Coste, 2014). Le reste de l'eau est contenue dans le voile, coule sur les bords du voile ou est diffusée dans l'air.

ambiant. L'hydroliage peut consommer de 600 à 900 litre d'eau par kg de fibres, cependant l'eau récupérée sous les jets d'eau est filtrée et réutilisée en circuit fermé. Après la phase d'hydroliage, le non-tissé hydrolié est essoré par succion de l'eau puis par séchage dans un four à flux d'air chaud.

Les paramètres d'hydroliage qui influenceront la structure non tissée finale sont la pression des jets d'eau (de 20 à 800 bars), l'orientation et la géométrie des buses d'injecteur (diamètre variant de 80 à 150 μm), la densité et le nombre de rangées d'injecteurs. Pour des fibres synthétiques, la vitesse de production peut atteindre jusqu'à 500 m/min pour des largeurs de voile jusqu'à 5 m.

5. MATERIAUX COMPOSITES RENFORCES PAR DES FIBRES DE LIN

5.1. Définition générale d'un composite

Le terme « matériau composite » désigne un matériau constitué de l'assemblage de deux matériaux dont l'ensemble des performances est supérieur à celui des composants pris séparément (Berthelot, 2005). La réalisation d'un matériau composite nécessite donc l'association d'au moins deux constituants: le renfort et la matrice. L'association de ces deux phases en crée une troisième appelé interface ou interphase. Les propriétés de cet ensemble dépendent des propriétés des constituants, de leur distribution géométrique, de leurs proportions, et de leurs interactions. Il est donc nécessaire de connaître les propriétés mécaniques et physicochimiques des constituants, la fraction volumique de chacun, l'orientation et la distribution du renfort, ainsi que la nature des interactions matrice/renfort.

Le renfort apporte au matériau sa tenue mécanique et la matrice permet d'assurer le transfert des sollicitations extérieures au renfort par l'intermédiaire de l'interface. La matrice permet également de protéger le renfort des agressions extérieures et définit la température maximale d'utilisation.

Pour les composites à matrices organiques (CMO), il existe deux grands types de matrices utilisables. On distingue les résines liquides therm durcissables et les polymères thermoplastiques solides. Ces deux groupes sont distincts, bien que des résines thermoplastiques liquides existent sur le marché aujourd'hui. Les matrices thermoplastiques sont sous forme solide avant mise en œuvre. Elles doivent être chauffées au-dessus de la température de fusion du polymère pour imprégner le renfort et sont refroidis pour donner la

forme finale de la pièce. Pour les matrices thermodurcissables, l'imprégnation du renfort se fait grâce à la résine liquide, puis la forme finale est donnée par réticulation de l'ensemble, par apport d'énergie (chauffage, UV).

Pour la réalisation de biocomposites, la plupart des méthodes de mise en œuvre conventionnelles des matériaux composites sont utilisables.

La matrice est choisie en fonction de la technique de mise en œuvre, mais le choix est tout d'abord dicté par la température de transformation de la matrice. En effet, les fibres végétales possèdent une température de dégradation d'environ 200°C (Van de Velde et Baetens, 2001), due à la dégradation de la cellulose et des autres constituants. L'utilisation des matrices thermodurcissables est possible (sauf hautes température e.g polyimides) mais l'utilisation de matrices thermoplastiques est par contre limitée à une gamme de polymères dont la température de transformation est inférieure à 200°C, comme par exemple le polyéthylène, le polypropylène, le polyamide 11 ou l'acide polylactique. Cependant des travaux montrent qu'un chauffage bref inférieur à 10 minutes à une température de 190°C entraîne déjà une chute de la rigidité des fibres (Bourmaud et Baley, 2010). Les travaux de thèse de Destaing (2012) ont montré que la contrainte et la déformation à rupture de fibres de lin diminuait au-delà de 160°C pour un maintien de 30 minutes. La température et le temps d'exposition sont donc deux paramètres importants.

5.2. Relation entre les propriétés des fibres de lin et les propriétés mécaniques des matériaux composites.

Pour les mêmes fibres, la variation, l'orientation, l'architecture et la fraction volumique des renforts entraînent forcément une évolution des propriétés mécaniques des composites.

5.2.1.1. Propriétés mécaniques intrinsèques des fibres

En considérant une simple loi des mélanges, il est à priori possible d'établir une relation directe entre les propriétés mécaniques d'un composite UD et celles des fibres. De prime abord, le facteur influençant le plus les propriétés mécaniques longitudinales des composites serait la performance du renfort, et donc les propriétés mécaniques intrinsèques des fibres, ainsi que la fraction volumique de fibres.

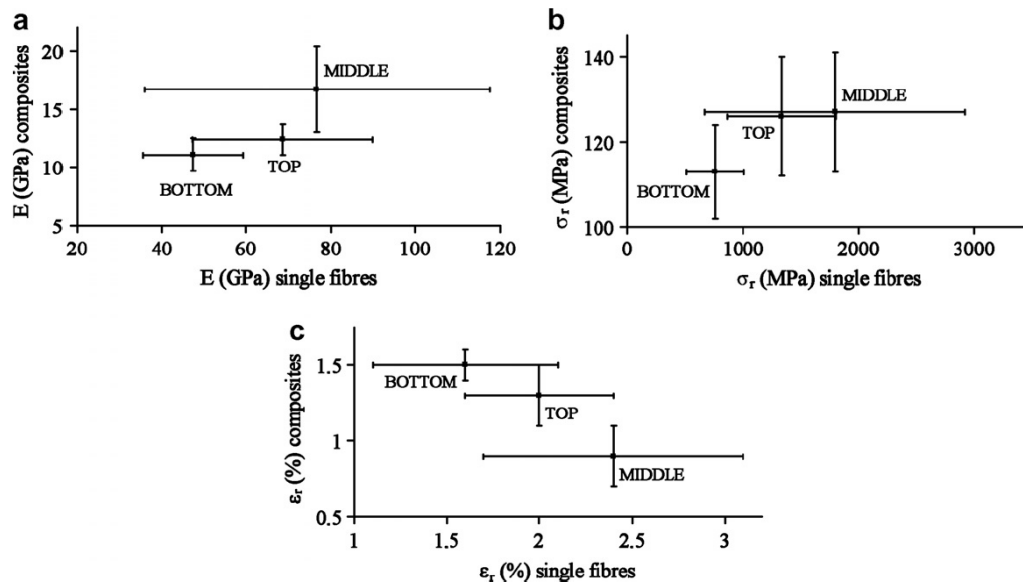


Figure 34 Propriétés en traction de composites à renfort UD de en fonction des propriétés mécaniques des fibres (Charlet et al., 2007).

Charlet et al. (2007) ont étudié les propriétés mécaniques de composites à renfort UD de lin et matrice polyester, réalisés à partir de fibres provenant du milieu, de la tête et du bas de la tige de la plante. Le module d'Young des composites était corrélé avec celui des fibres unitaires (Figure 34).

Coroller et al. (2013) ont étudié les performances mécaniques de composites à matrice epoxy et renfort unidirectionnel de lin, fabriqués à partir de lots de fibres différents. Pour deux lots de fibres teillées, Andréa et Marylin, les propriétés en traction (module d'Young et contrainte à rupture) des composites étaient reliées aux propriétés en traction des fibres (Tableau 4). Ce travail a montré l'importance de l'individualisation des fibres grâce au peignage

	Composites				Fibres		
Matériau	V _f (%)	E(GPa)	σ (MPa)	ε (%)	E(GPa)	σ (MPa)	ε (%)
Epoxy/Hermès lin UD	22 ± 2	13 ± 0,3	208 ± 21	1,2 ± 0,2	48,9 ± 12,0	1066 ± 342	2,8 ± 0,8
	42 ± 1	22 ± 0,6	362 ± 19	1,3 ± 0,1			
	51 ± 2	26 ± 2,0	408 ± 36	1,3 ± 0,1			
Epoxy/Andrea lin UD	23 ± 1	11 ± 1,9	165 ± 11	1,1 ± 0,1	48,3 ± 13,8	841 ± 300	2,2 ± 0,8
	36 ± 1	20 ± 3,0	207 ± 08	1,2 ± 0,1			
	51 ± 4	28 ± 3,6	290 ± 22	1,1 ± 0,1			
Epoxy/Marylin lin UD	36 ± 1	24 ± 1,8	271 ± 32	1,3 ± 0,1	57,1 ± 15,5	1135 ± 495	2,1 ± 0,6
	48 ± 2	31 ± 1,5	348 ± 28	1,2 ± 0,1			
	54 ± 3	34 ± 3,0	364 ± 14	1,3 ± 0,1			

Tableau 4 Relation entre les propriétés mécaniques de composites UD et celles des différents lots de fibres de lin utilisés. Adapté de (Coroller et al., 2013).

(Baley et al., 2012) ont étudié les propriétés de composites à matrice époxy et renfort UD de lin réalisés à partir de fibres étuvées et non étuvées. Les différences de contrainte à rupture des fibres entraînées par l'étuvage étaient retrouvées au niveau de la contrainte à rupture des composites.

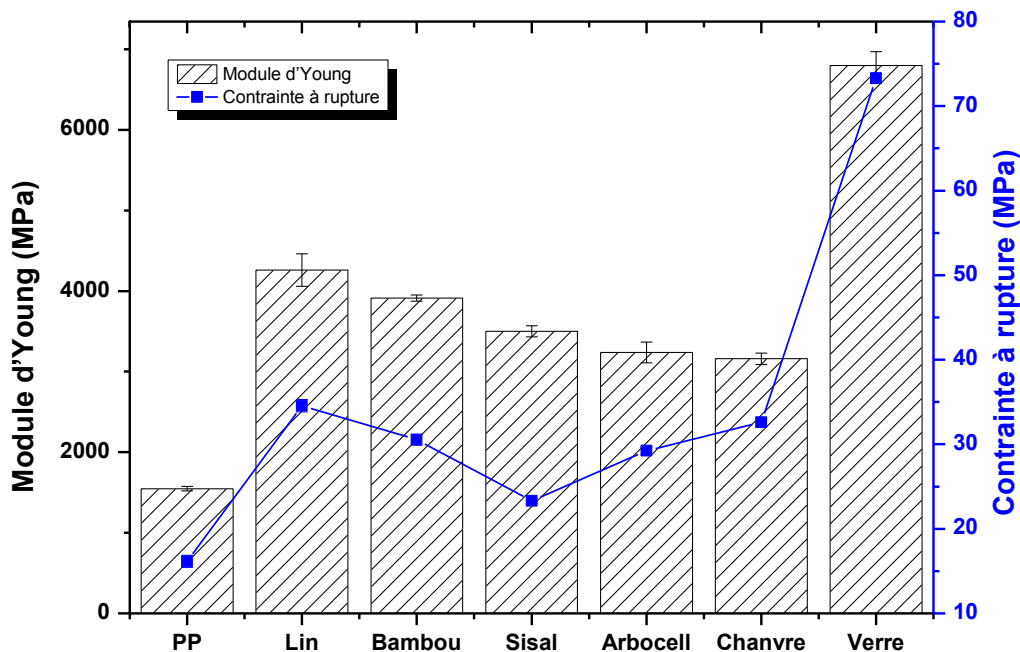


Figure 35 Influence de la nature de la fibre de renfort sur le renforcement du PP (30 % en masse). Thèse de doctorat(Coroller, 2013).

Les travaux de Coroller (2013) ont montrés que le type de fibres (chanvre, lin, sisal, bambou, cellulose) influençait le module d'Young et la contrainte à rupture, pour un

composite à matrice polypropylène renforcé par 30 % de fibres courtes en masse et mis en œuvre par injection (Figure 35). Par ailleurs, l'auteur précise que les différences de propriétés mécaniques de chaque type de fibres, ne peuvent être tenues pour unique responsable des différences de propriétés mécaniques des composites.

5.2.1.2. Propriétés d'interfaces

L'interface entre fibre et matrice est créée lors de la mise en œuvre des composites. Les phénomènes mis en jeu sont le mouillage puis l'adhérence. L'adhérence se définit comme la résistance de la liaison fibre/matrice. Plusieurs théories existent pour expliquer les mécanismes d'adhérence, mettant en jeu des phénomènes physiques et chimiques. L'adhésion fibre/matrice est majoritairement liée à des interactions chimiques avec les résines thermodurcissables, tandis que celle-ci est liée à des interactions physiques pour des matrices thermoplastiques. La qualité de la liaison fibre/matrice peut être estimée en évaluant l'adhérence par des tests micromécaniques. Ces tests permettent de déterminer une contrainte apparente de cisaillement interfacial (IFSS)(Herrera-Franco et Drzal, 1992).

Il faut noter que dans le cas des composites à fibres synthétiques (verre, carbone, aramide,...), celles-ci possèdent à leur surface un ensimage dédié pour chaque matrice, permettant d'optimiser l'adhérence fibre/matrice.

De nombreux traitements ont été développés pour améliorer l'interface fibre végétale/matrice (Bledzki et Gassan, 1999). Par exemple, des traitements employant des silanes, de la soude (NaOH), des traitements d'acétylation ont été étudiés (Baley et al., 2006a; Bledzki, 2008; Bledzki et al., 2004; Cantero et al., 2003; Elsabbagh et al., 2009; Hornsby et al., 1997; Zafeiropoulos et al., 2002a, 2002b).

Pour le cas des résines thermodurcissables, l'utilisation de fibres brutes non traitées permet d'obtenir des contraintes de cisaillement à l'interface fibre/matrice non négligeables. Par exemple avec une résine polyester insaturé, il est possible d'obtenir des contraintes de cisaillement très proches pour le système lin/polyester (14,2 MPa) ou verre/polyester (16,1 MPa) (Baley et al., 2006a). Pour une résine époxy, la valeur de contrainte de cisaillement est de 22,4 MPa pour le système lin/époxy et 37,2 MPa pour le système verre/époxy.

Dans le cas de certains polymères thermoplastiques à faible tension de surface, par exemple le polypropylène, l'adhérence fibre/matrice est plutôt mauvaise. Pour le système verre désensimé/PP la contrainte de cisaillement interfacial déterminée par fragmentation est de 3 MPa (Zhou et al., 2000), celle-ci est de 4,5 MPa pour le système lin/PP(Awal et al.,

2011). Cependant, des valeurs plus élevées sont rapportées pour le système lin/PP. Zafeiropoulos et al. (2001) rapportent une valeur de 12,75 MPa. Garkhail et al. (2009) rapportent une contrainte de 9,8 MPa.

L'introduction de fibres végétales dans une matrice semi cristalline joue parfois le rôle d'agent nucléant et peut modifier la cristallisation de la matrice avec la formation d'une couche de transcristallinité à l'interface fibre/matrice (Garkhail et al., 2009; Zafeiropoulos et al., 2001). Le développement de cette couche est observé par plusieurs auteurs lors de la cristallisation isotherme de la matrice durant plusieurs minutes. La présence de cette couche transcristalline peut avoir une influence sur la contrainte de cisaillement interfacial. Zafeiropoulos et al. (2001) rapportent une augmentation importante de la contrainte de cisaillement tandis que Garkhail et al. (2009) rapportent une faible diminution de la contrainte de cisaillement interfacial.

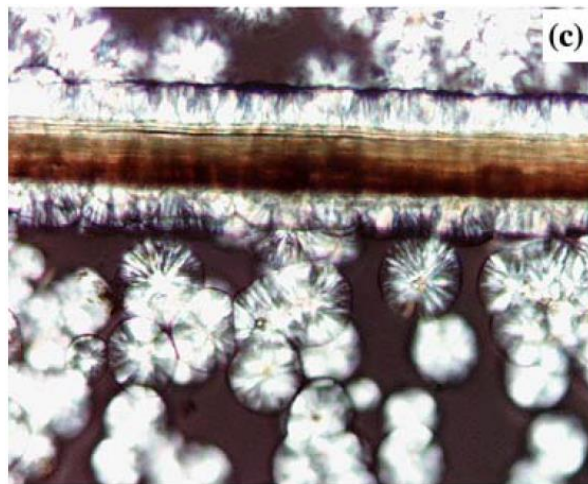


Figure 36 Couche de transcristallinité observé pour le système lin/PP après 10 minutes à 138°C. (Garkhail et al., 2009)

L'ajout à la matrice PP de polypropylène sur lequel sont greffés des fonctions anhydride maléique (PPgMA) permet dans la plupart des travaux de la littérature d'augmenter la contrainte de cisaillement interfacial entre la matrice et les fibres (Tableau 5).

Test	Fibre	Matrice	IFSS (MPa)	Référence
Pull-out	Lin	PP	10,6	(Stamboulis et al., 2001)
		PPgMA	11,4	
	Lin	PP	7,8	(Arbelaiz et al., 2005a)
		PPgMA	8,9	
	Lin	PP	14,9	(Van de Velde et Kiekens, 2001)
		PPgMA	25,1	
Fragmentation	Lin	PP	4,5	(Awal et al., 2011)
		PPgMA	13,9	
	Lin	PP	13	(Van Den Oever et Bos, 1998)
		PPgMA	28	

Tableau 5 Valeurs de contrainte de cisaillement à l'interface fibre/matrice pour des systèmes lin/PP et lin/PPgMA.

L'anhydride maléique présent sur les chaînes de PP joue le rôle d'un agent couplant. La Figure 37 présente le mécanisme de réaction entre les fonctions anhydride maléique et la surface des fibres végétales. Les mécanismes mis en jeu seraient une réaction d'estérification entre un groupement hydroxyle de la fibre et l'anhydride d'acide, menant à la création d'une liaison covalente entre matrice et fibre, ainsi qu'une interaction entre le groupement acide carboxylique et un groupement hydroxyle (Felix et Gatenholm, 1991).

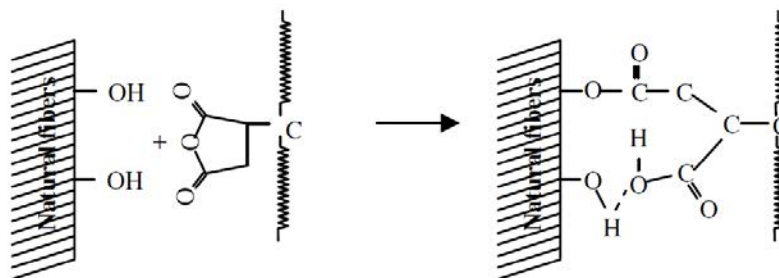


Figure 37 Mécanismes de réaction chimique entre une fibre végétale et un polymère PPgMA (Park et al., 2006).

Au niveau des propriétés macroscopiques des composites, l'utilisation de polypropylène sur lequel sont greffés des fonctions anhydride maléique permet d'améliorer les performances en traction de composites Lin/PP (Arbelaiz et al., 2005b; Biagiotti et al., 2004; Cantero et al., 2003). Arbelaiz et al. (2005b) ont étudié l'influence du taux de comptabilisant PPgMA sur le module d'Young et la contrainte à rupture de composites injectés à matrice PP renforcés par des fibres de lin à hauteur de 30 % en masse. Les résultats suggèrent un optimum aux alentours de 5% de PPgMA par rapport à la masse de fibres introduite (Figure 38).

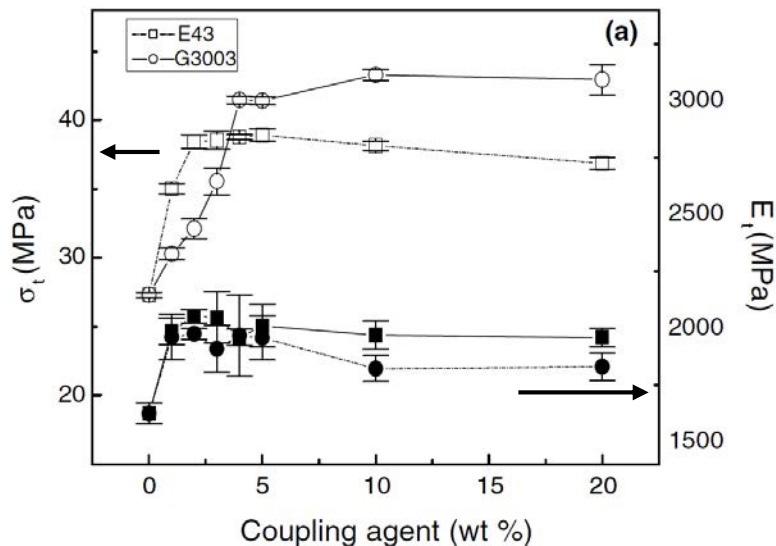


Figure 38 Influence du taux de PPGMA sur les propriétés mécaniques de composites PP/lin 30 % m.
Adapté de (Arbelaiz et al., 2005b).

Des travaux récents ont montré l'occurrence de pelages de la paroi de fibres de lin lors d'essais de déchaussements de microgouttes sur des systèmes lin/PLA (le Duigou et al., 2012) et lin/époxy (Le Duigou et al., 2014). Le Duigou et al. (2014) ont par ailleurs mis en évidence la pénétration de résine époxy dans la fibre, formant une couche à l'intérieur de celle-ci sur une épaisseur de 2 μm . Cette couche pourrait influencer le pelage de la fibre.

En bilan, il faut donc noter que l'adhérence fibre/matrice n'est pas limitée à la qualité de la liaison en surface de la fibre mais également à la cohésion des couches internes de la fibre.

5.2.1.3. Morphologie et état de division des fibres

Les fibres de lin sont assemblées sous forme de faisceau dans la plante et restent sous cette forme après extraction. Un état de division élevé des faisceaux est recherché afin de favoriser la surface de contact fibre/matrice pour permettre un transfert de charge efficace.

Van de Weyenberg et al. (2003) ont étudié l'effet du teillage et du peignage des fibres sur les propriétés mécaniques de composites à matrice époxy et renfort unidirectionnel de lin. L'étape de peignage des fibres, qui permet une division et un alignement des fibres par rapport au seul teillage, n'entraînait pas d'amélioration des propriétés mécaniques des composites, ni au niveau de la contrainte à rupture, ni au niveau du module d'Young.

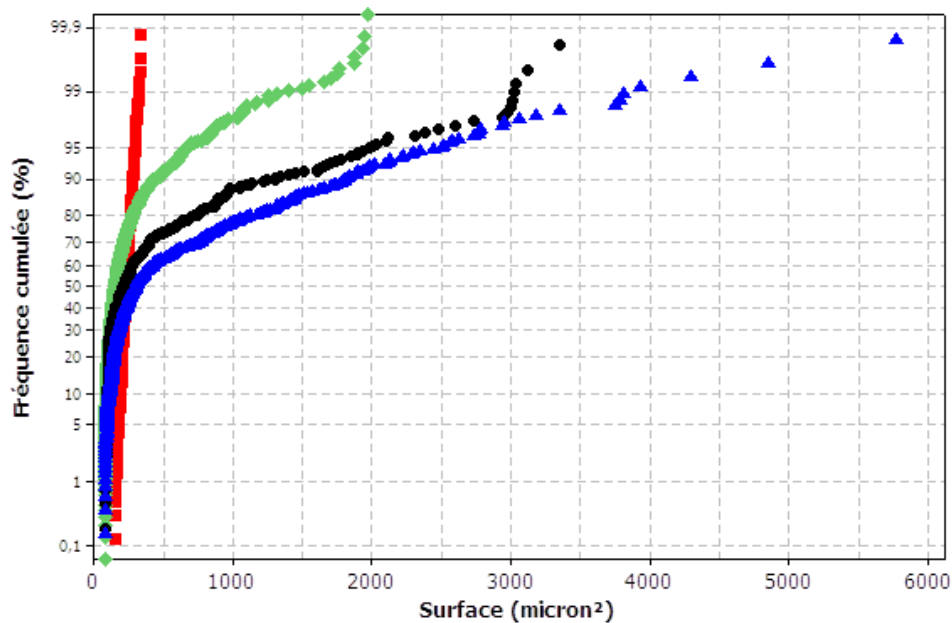


Figure 39 Distribution des surfaces des renforts présents dans la section des composites : Verre (■), Hermès (◆), Andrea (●) et Marilyn (▲) (Coroller et al., 2013).

Cependant, Coroller et al. (2013) ont étudié les performances mécaniques de composites à matrice époxy et renfort unidirectionnel de lin, fabriqués à partir de lots de fibres différents. Les composites renforcés par des fibres peignées de la variété Hermès possédaient des contraintes à rupture plus élevées que les composites renforcés par des fibres teillées de la variété Marilyn. Les fibres unitaires de ce dernier lot possédaient pourtant des propriétés mécaniques supérieures à celles prélevées sur le lin Hermès (Tableau 4). Cette différence était expliquée par la meilleure division des faisceaux de fibres. En effet, le taux de fibres unitaires était respectivement de 93 % pour Hermès et 69 % pour Marilyn (Figure 39).

Dans le cas de composites à fibres plutôt longues (UD, tissés, non-tissés), l'optimisation de la morphologie et la division des renforts doit être gérée avant la mise en œuvre, car cette dernière modifie peu l'aspect des renforts. Par contre pour des composites renforcés par des fibres courtes et mis en œuvre par extrusion et/ou injection, la morphologie des renforts est fortement influencée par la mise en œuvre. L'état de division des faisceaux de fibres peut être augmenté à ce moment (Arbelaiz et al., 2005b; Bos et al., 2006; Le Moigne et al., 2011).

Ausias et al. (2013) ont étudié les propriétés mécaniques de composites PP/lin mis en œuvre par extrusion et injection. Une deuxième extrusion des granulés permettait d'augmenter la contrainte à rupture des éprouvettes injectées par rapport à une seule extrusion avant injection (Figure 40). Cette deuxième extrusion diminuait le rapport d'aspect des renforts en provoquant une diminution de la longueur de fibres mais permettait d'augmenter la division

des faisceaux de fibres. En effet, le nombre de particules de renfort mesuré sur la même surface de composite évoluait de 1612 à 2038.

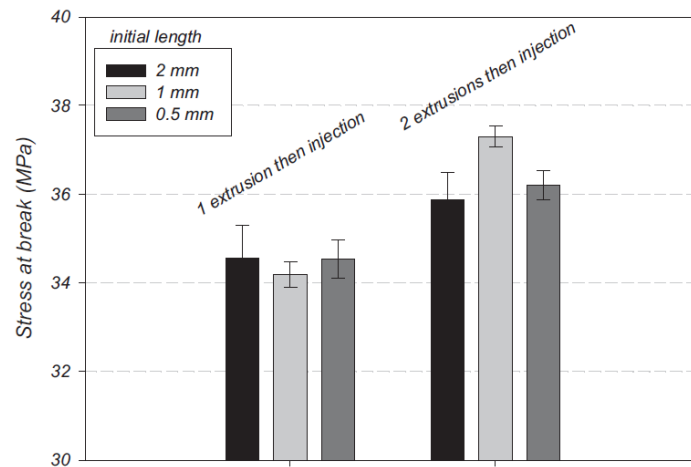


Figure 40 Effet du nombre d'extrusion avant injection sur le module d'Young de composites lin/PP (Ausias et al., 2013)

Des observations similaires ont été effectuées par Beaugrand et Berzin, (2013). Ces auteurs ont étudié les propriétés en traction de composites à matrice polycaprolactone préparés par extrusion et injection avec 20 % de fibres de chanvre en masse. Deux profils de vis et deux vitesses de remplissage différentes sont étudiés. Pour un même profil de vis, la contrainte à rupture et le module d'Young augmentent avec le rapport d'aspect (Figure 41a). Cependant pour deux types de profils de vis différents, un rapport d'aspect plus élevé n'entraînait pas d'augmentation de la contrainte à rupture. Les rapports d'aspect des fibres plus faibles du profil de vis 1, le plus sévère, donnaient les meilleures résistances, malgré une diminution des longueurs de renforts par rapport au profil 2 (Figure 41b). On note par contre un effet positif du rapport d'aspect sur la contrainte à rupture pour chaque profil de vis.

Ces résultats étaient expliqués par la plus grande faculté de division du profil 1, plus sévère que le profil 2. Les longueurs et rapport d'aspect des fibres étaient diminués, mais entraînaient une augmentation de la surface de contact fibre/matrice (Figure 42). Le rapport d'aspect seul ne donne donc pas une description de la dimension des faisceaux de fibres (Beaugrand et Berzin, 2013).

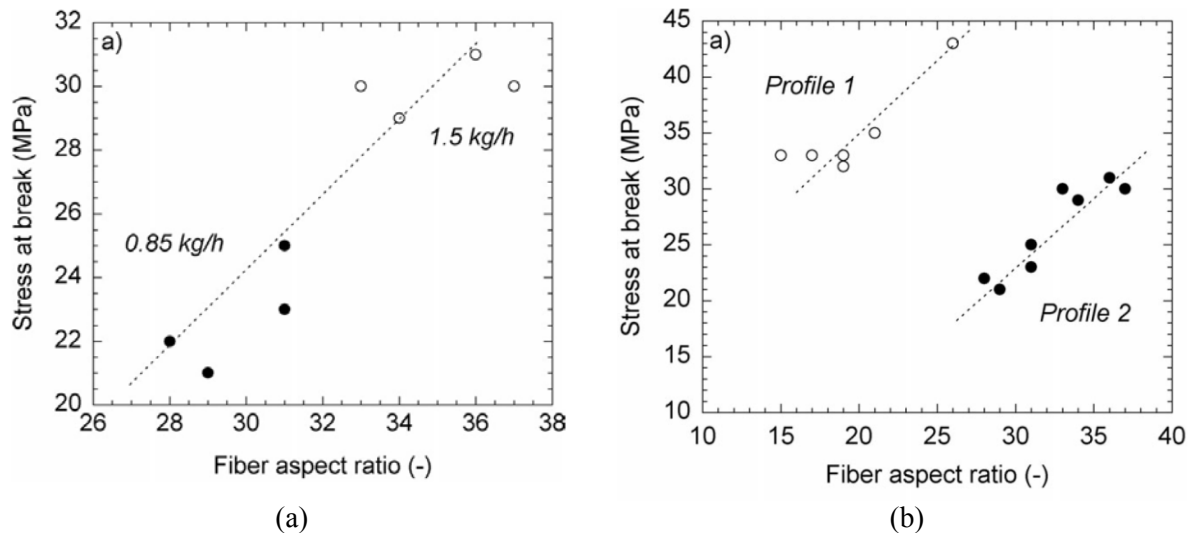


Figure 41 (a) Evolution de la contrainte à rupture des composites en fonction du rapport d'aspect des renforts, pour deux taux de remplissage et pour un même profil de vis. (b) Evolution de la contrainte à rupture des composites en fonction du rapport d'aspect des renforts pour deux profil de vis.

Dans le cas des fibres végétales, la longueur, mais également le diamètre des renforts évoluent durant la mise en œuvre des composites, contrairement aux fibres synthétiques dont le diamètre est constant. Un rapport d'aspect L/d élevé est une condition nécessaire mais pas suffisante pour garantir les performances des matériaux composites.

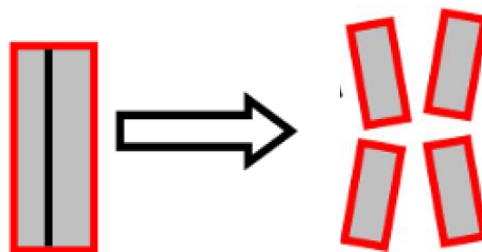


Figure 42 Augmentation de la surface spécifique des fibres pour un même rapport d'aspect. Adapté de Le Duc (2013).

5.2.1.4. Degré de rouissage

Van de Weyenberg et al. (2003) ont étudié l'influence du degré de rouissage de fibres de lin sur les propriétés mécaniques en traction de composites à matrice époxy et renfort unidirectionnel. Les résultats ont montré qu'un degré de rouissage élevé des fibres permettait d'obtenir de meilleures propriétés mécaniques en traction. D'après les auteurs, les faisceaux de fibres de lin vert ne sont pas attaqués par le rouissage et sont donc moins divisés et contiennent des impuretés.

Li et al. (2009) ont étudié l'influence du degré de rouissage du chanvre sur les propriétés de composites injectés à matrice polypropylène renforcés par des fibres de chanvre à 40 % en masse. Le rouissage permettait d'augmenter la contrainte à rupture des composites de 35 MPa à 44 MPa, tandis que la contrainte à rupture des fibres unitaires chutait avec le rouissage.

Van de Velde et Kiekens (2003) ont étudié l'influence du degré de rouissage (lin vert, sous roui et roui) sur les propriétés de composites à matrice polypropylène et renforts UD. Des différences étaient constatées, cependant la fraction volumique des composites était différente et ne permettait pas de conclure sur l'influence du rouissage.

Au niveau des propriétés interfaciales, Joffe et al. (2003) rapportent des contraintes de cisaillement interfacial (IFSS) plus élevées pour le système lin roui/PP (12,75 MPa) que pour le système Lin vert/PP (6,33 MPa). Les mesures ont été effectuées à l'aide de tests de fragmentation.

Par ailleurs, Zafeiropoulos et al. (2001) ont étudié la formation d'une couche de transcristallinité du PP à l'interface avec des fibres unitaires de lin lors de la cristallisation isotherme de la matrice au voisinage de la température de cristallisation. Les mécanismes de cristallisation étaient différents entre du lin vert et du lin roui. Un retard dans la formation de la couche transcristalline était observé pour le lin vert par rapport au lin roui. Celle-ci ne se développait qu'après la croissance de sphérolites dans toute la matrice. La couche transcristalline était par ailleurs irrégulière pour le lin vert.

La suite du document présente les travaux expérimentaux réalisés.

Chapitre II METHODES EXPERIMENTALES

Dans ce chapitre, les méthodes expérimentales utilisées dans les travaux de ce manuscrit sont présentées.

1. MOYENS DE CARACTERISATION DES FIBRES DE LIN

1.1. L'analyse thermogravimétrique (ATG)

L'analyse thermogravimétrique est utilisée afin d'étudier les pertes de masses de fibres de lin lors d'une montée en température.

Les essais sont réalisés sur des faisceaux de fibres de lin teillé. Les échantillons ont été maintenus à une température de 23 °C et une humidité relative de 50 % pendant 72 heures avant l'analyse. Les expériences ont été réalisées sur un appareil Mettler Toledo TGA / DSC 1. Les échantillons (50 mg) ont été chauffés dans l'air de 25 °C à 600 °C à la vitesse de 3 °C.min⁻¹. La variation de masse en fonction de la température est enregistrée.

1.2. Mesure de la couleur des fibres par spectrocolorimétrie

Des essais de colorimétrie ont été effectués pour pouvoir déterminer la couleur absolue des échantillons de fibres en fonction du niveau de rouissage.

Les essais ont été effectués sur des faisceaux de fibres. Les résultats sont présentés dans le système colorimétrique CIE L*a*b* 1976 selon la norme ISO 11664. Ce système permet de décrire une couleur à l'aide de trois paramètres colorimétriques L*, a* et b*. Les paramètres chromatiques a* et b* définissent la teinte respectivement du vert au rouge et du bleu au jaune. Ces deux coordonnées peuvent être représentées sur le cercle de chromaticité (Figure 43a). Ici a* et b* varient de -60 à +60. Le paramètre (L*) définit la luminosité de la couleur et varie de 0 à 100. La valeur 0 correspond à la couleur noire, 100 correspond à la couleur blanche. Réunis, les 3 paramètres deviennent des coordonnées de l'espace colorimétrique L*, a*, b* (Figure 43b).

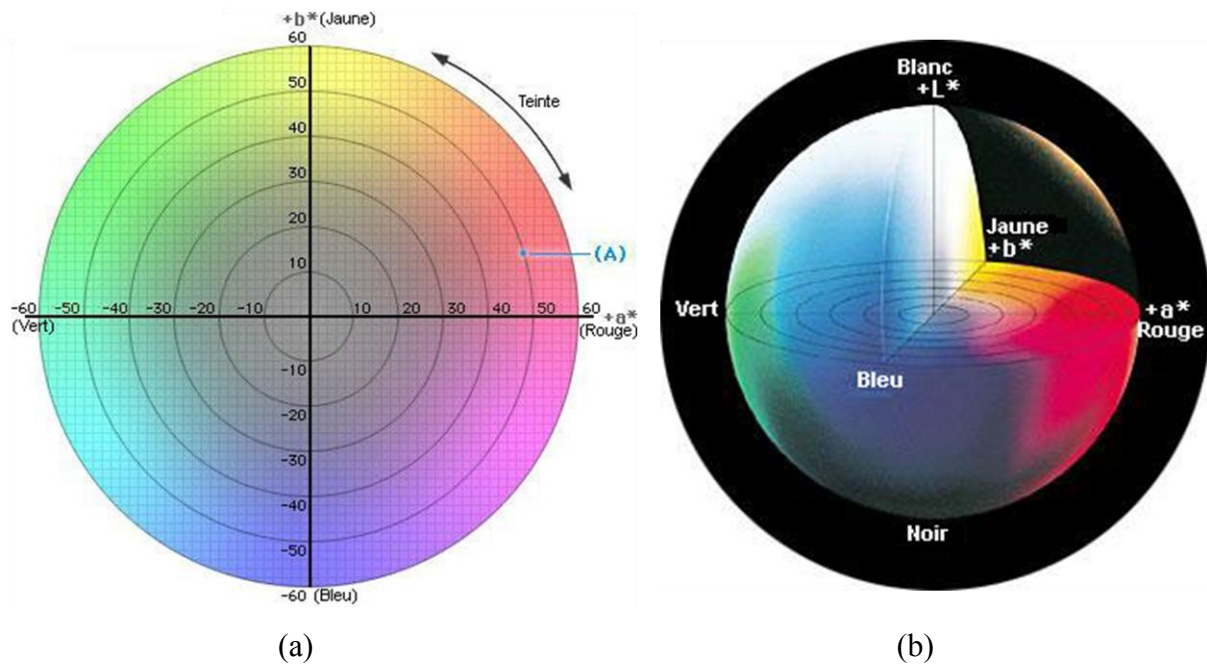


Figure 43 (a) Diagramme de chromaticité a^* , b^* (b) Représentation du solide des couleurs pour l'espace colorimétrique $L^*a^*b^*$.

Les mesures sont effectuées à l'aide d'un appareil Minolta pour l'illuminant D65 avec un angle d'observation de 10° . La mesure consiste à envoyer un flash de lumière blanche sur l'échantillon grâce à l'appareil, puis celui-ci mesure la réponse spectrale de l'échantillon et, à l'aide d'un traitement du signal, la convertit en coordonnées $L^*a^*b^*$. Pour chaque lot, 5 mesures sont effectuées et les valeurs obtenues sont moyennées.

1.3. Mesure de la sorption d'eau des fibres

L'objectif de cet essai est de quantifier la variation du contenu en eau de fibres de lin en fonction de l'humidité relative de l'atmosphère d'essai.

Avant les essais de sorption d'eau, les échantillons ont été stockés à une température de 23°C et une humidité relative de 50% pendant 8 jours, puis pesés. Les fibres sont placées dans une enceinte hermétique en verre, au-dessus d'une solution saline saturée. Des solutions de NaCl, KCl ainsi que de l'eau distillée ont été utilisées. Ces solutions correspondent respectivement à des activités de 0,76 ; 0,84 (Weast, 1981) et 1 pour l'eau, ce qui provoque des humidités relatives de respectivement 76, 84 et 100% dans l'enceinte. Les échantillons ont été laissés dans ces atmosphères jusqu'à ce que leurs masses aient atteint une valeur constante. La prise de masse est donnée en pourcentage par rapport à la masse donnée pour une humidité relative de 50%.

1.4. Extraction des fibres par des voies chimiques

L'objectif de cet essai est de quantifier les résidus présents en surface des fibres (écorce et lamelles mitoyennes).

Les extractions ont été réalisées sur des faisceaux de fibres selon des méthodes décrites dans la littérature (Goubet et al., 1995; Jauneau et al., 1992). La 1^{ère} étape (A) est un lavage des échantillons à l'eau distillée (30 s, 25°C). Cette étape permet de retirer les poussières. Un extracteur de marque JP Selecta est utilisé pour la suite des essais. Les échantillons lavés sont placés dans des creusets filtrant munis de verre fritté. La 2nd étape (B) est un traitement à l'eau distillée (100°C, 3 x 1 h). Enfin, la 3^e étape (C) est un traitement par une solution d'acide éthylène diamine tétraacétique (EDTA) (0,25%, 100°C, 1 h) puis à l'eau distillée (100°C, 2 x 1h). Avant et après chaque étape, les échantillons sont rincés à l'eau distillée puis séchés 12 heures à 80°C et les pertes de masse mesurées.

Etape	Traitements	Temps	Température °C
A	Eau	30s x 3	25°C
B	Eau	1h x 3	100°C
C	EDTA et Eau	1h + 1h x 2	100°C

Tableau 6 Conditions expérimentales des extractions.

1.5. Mesures des propriétés mécaniques des fibres unitaires par traction

Les fibres unitaires ont été manuellement extraites des faisceaux. Les travaux de Charlet et al. (2007) montrent une influence de la zone de prélèvement des fibres dans la tige, sur les propriétés mécaniques en traction de fibres de lin ainsi que sur celles de composites à renfort UD. Dans les travaux présentés dans ce manuscrit, les fibres ont systématiquement été sélectionnées dans la zone centrale de la plante. Les fibres sélectionnées sont collées sur des supports en papier afin de pouvoir être manipulées sans être endommagées. La longueur libre des éprouvettes est de 10 mm. Avant essais, le diamètre de chaque fibre est mesuré en trois points à partir d'observations par microscopie optique dans la direction transverse à l'axe de la fibre. La moyenne des valeurs, soit le diamètre moyen appelé $\varnothing_{\text{traction}}$, est considérée pour le calcul de la section de l'éprouvette en considérant la surface d'un disque de diamètre $\varnothing_{\text{traction}}$.

Les essais de traction sur fibres unitaires ont été effectués selon la norme expérimentale XP T25-501-2 dans des conditions de température et d'humidité contrôlées (23 C, 50 % RH). Avant essais, les échantillons ont été conservés au moins 48

heures dans ces conditions. Une machine MTS Synergie RT/1000 équipée d'un capteur 2 N de marque Interface et de référence ULC-2N-215 est utilisée. La vitesse de déplacement de la traverse est de 1 mm.min^{-1} . La déformation de l'éprouvette est mesurée à partir du déplacement de la traverse. Le calcul du module de traction et de la déformation tient compte de la compliance du dispositif d'essais. Environ 50 fibres ont été testées pour chaque lot. Sauf cas particulier, le module de traction est calculé en mesurant la pente dans la dernière zone de la courbe de traction, juste avant la déformation à rupture.

La méthode d'essai est validée en mesurant les propriétés mécaniques de 50 fibres de verre E extraites d'un renfort UD. Les propriétés obtenues ($E=75\pm 4 \text{ GPa}$, $\sigma=2090\pm 223 \text{ MPa}$, $\varepsilon=3,1\pm 0,53 \%$) sont celles couramment mesurées dans des travaux de la littérature (Berthereau et Dallies, 2008), ce qui confirme la validité de la méthode d'essai.

2. METHODES DE MISE EN ŒUVRE DES COMPOSITES

2.1. Réalisation de composites PP/fibres courtes de lin par extrusion puis moulage par injection

Le polymère utilisé comme matrice est le polypropylène (PP) référence PPC 10642 fourni par Total Petrochemicals. Afin d'améliorer la compatibilité entre la matrice et les renforts, 4 % en masse d'un agent comptabilisant (Orevac CA100, Arkema) est ajouté à la matrice PP. Il est composé de polypropylène sur lequel est greffé de l'anhydride maléique (PPgAM). Les matériaux composites sont fabriqués en 3 étapes. Les matières premières sont mélangées par extrusion, puis réduites en granulés et moulées par injection. Les fibres coupées et le PPgAM sont étuvés pendant 24 heures à une température de 50°C avant le mélange avec le PP par extrusion. L'extrusion est effectuée à l'aide d'une extrudeuse monovis de marque Fairex, à une vitesse de 20 tpm. La température de vis et de filière est de 190°C . Les fibres sont ajoutées à hauteur de 30% en masse. Les granulés extrudés sont étuvés pendant 24h à 50°C avant le moulage par injection. L'injection des éprouvettes de traction est effectuée à 190°C dans une presse Battenfeld équipée d'un moule permettant de réaliser des éprouvettes de type altère suivant la norme ISO 527-2. La température du moule est de 30°C . Le temps de résidence, entre l'introduction des granulés et le démoulage de la pièce, est de 300s.

2.2. Moulage de matériaux composites à renfort unidirectionnel Lin/ Epoxy

Des éprouvettes individuelles de matériaux composites unidirectionnels (UD) sont réalisées. Les matériaux composites sont imprégnés manuellement et moulés en suivant la procédure décrite par Coroller et al. (2013).

Cette méthode permet de mettre en œuvre des composites UD à partir de mèches de lin brut avec répartition homogène des fibres au sein de l'éprouvette. Il est donc possible de comparer les propriétés mécaniques de composites UD réalisés avec différents lots de fibres sans utiliser de préformes nécessitant une fabrication industrielle.

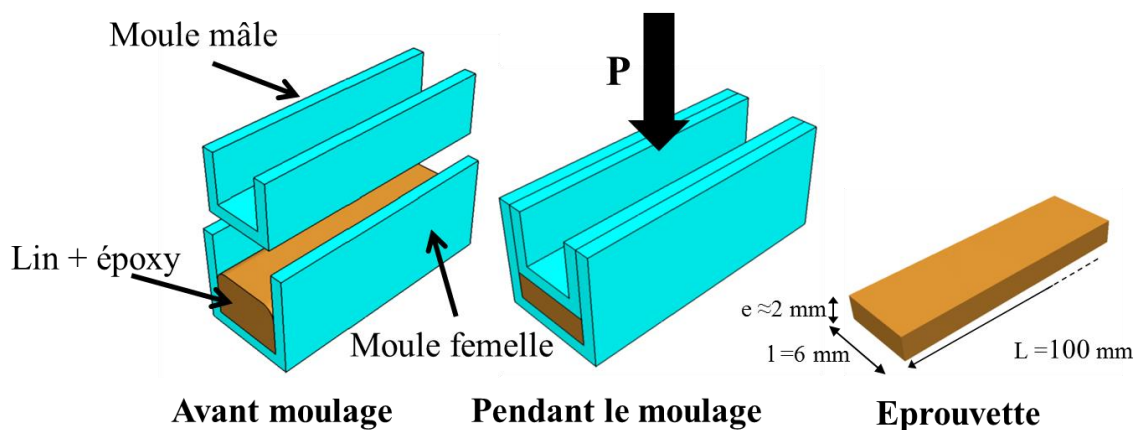


Figure 44 Schéma de principe du moulage des matériaux composites.

Les matériaux sont réalisés à partir de mèches de lin brut coupées à une longueur de 100 mm. Les fibres sont pesées avant essais afin d'atteindre une fraction massique cible. Après imprégnation avec une résine époxy (Epolam 2020, Axson technologies), les mèches sont placées dans un rail en aluminium, puis un second rail est inséré (Figure 44). Une pression est appliquée afin d'obtenir une épaisseur de 2 mm. La pression est maintenue pendant le durcissement de la résine (24h à 23°C). Les éprouvettes sont cuites dans leurs rails, suivant les recommandations du fournisseur, à l'aide d'un cycle thermique (40°C, 3h puis 60°C, 2h puis 80°C, 2h puis 100°C, 4h), puis sont démoulées. L'éprouvette obtenue possède environ les dimensions suivantes: 100 x 6 x 2 mm³. Des talons en matériaux composites à renfort tissé verre/époxy ($\pm 45^\circ$) sont collés aux extrémités des éprouvettes, à l'aide d'un adhésif (Araldite 2011, Huntsman) et une dernière cuisson est réalisée (23°C, 24h ; 50°C, 12h) afin de permettre la polymérisation de l'adhésif. La fraction volumique effective de l'éprouvette est déterminée par mesure de la masse volumique de celle-ci.

2.3. Mise en œuvre par thermocompression de composites à matrice thermoplastique renforcés par des non-tissés de lin

Les deux matrices thermoplastiques utilisées sont le PLA (acide polylactique) et le polypropylène (PP). Les conditions de mise en œuvre des composites sont identiques pour les deux matrices.

Au préalable, la matrice polymère est tout d'abord transformée sous forme de films par extrusion et calandrage à l'aide d'une extrudeuse bi-vis Brabender et d'un système de calandrage. Les films produits possèdent une épaisseur de 100 μm pour une largeur de laize de 13,5 cm. Pour l'ajout d'agent comptabilisant PPgMA, un premier mélange par extrusion bi-vis est réalisé pour obtenir un mélange intime entre le PP et le PPgMA, puis le jonc extrudé est granulé et transformé par la suite sous forme de film.

La mise en œuvre des composites est réalisée par thermocompression d'un empilement de couches de renfort et de films de polymère, aussi appelé "Film stacking" (Bodros et al., 2007; Le Duigou et al., 2009). L'empilement est introduit dans un moule rectangulaire permettant d'obtenir des plaques dont les dimensions sont 16 cm x 13,5 cm x 2 mm. Les renforts et films de matrice sont découpés afin de respecter les dimensions du moule.

Afin d'obtenir la fraction volumique de fibres désirée, la séquence d'empilement et le nombre de couches de chaque constituant nécessaire est déterminée en considérant le volume du moule et les masses volumiques de la matrice et du renfort.

L'empilement est comprimé à une température de 190°C et sous une pression de 20 bar à l'aide d'une presse à plateau chauffant. La Figure 45 présente le cycle de pression et température utilisé. A $t=0$, le moule est inséré dans la presse préchauffée à une température de 190 °C. La pression est progressivement augmentée puis maintenue à 20 bar. La température est maintenue à 190°C pendant la montée en pression et le maintien en pression.

Après 8 minutes, le moule est refroidi par circulation d'eau jusqu'à une température de 20 °C. La pression (20 bar) est maintenue jusqu'à sortie de la plaque après refroidissement.

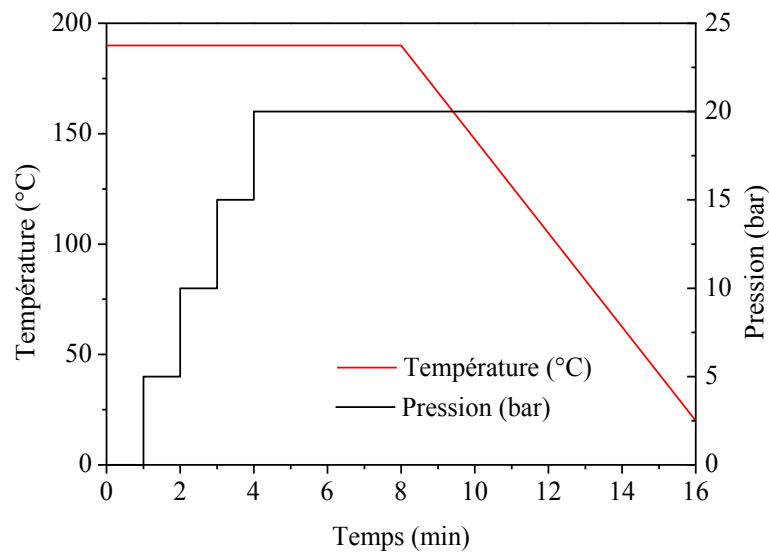


Figure 45 Cycle de mise en œuvre par thermocompression d'un empilement renfort/matrice.

La vitesse de refroidissement n'est pas linéaire. Ceci est dû à une limite technique de l'équipement. Elle est évaluée à environ $16^{\circ}\text{C}.\text{min}^{-1}$.

Avant la mise en œuvre, les constituants sont pesés, puis, la fraction massique de fibres effective du matériau composite est déterminée par pesée de la plaque après mise en œuvre.

3. MICROSCOPIE ET IMAGERIE

3.1. Observations par microscopie optique

La microscopie optique est utilisée pour observer des sections transverses de faisceaux de fibres, mesurer des diamètres de fibres unitaires de lin, ainsi que pour mesurer les dimensions de faisceaux de fibres de lin afin de déterminer leur rapport d'aspect. Les observations sont réalisées à l'aide d'un microscope Olympus muni d'un système de polarisation de la lumière et de logiciel Stream Essentials, ou d'une loupe binoculaire Leica associé au logiciel IM500.

La mesure du diamètre transverse des fibres de lin demande une préparation de l'échantillon. Pour cette mesure, quelques faisceaux de fibres sont enrobés dans une résine époxy de coulée (réalisation d'un unidirectionnel) et leur section transverse est polie.

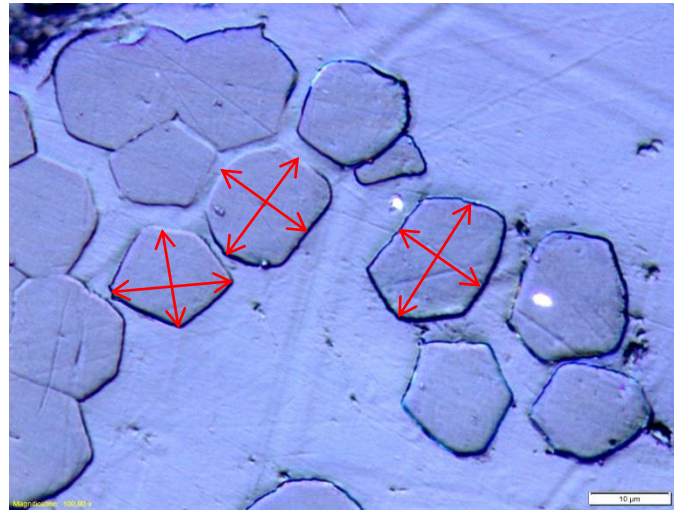


Figure 46 Vue en coupe de faisceaux de fibres de lin observés au microscope optique. Barre d'échelle:10µm.

Etant donné que les fibres de lin possèdent une section polygonale, deux distances par fibres sont mesurées et leur moyenne est considérée (Figure 46). Environ 250 fibres sont mesurées pour chaque échantillon afin de calculer un diamètre moyen nommé \varnothing_{lot} .

L'observation au microscope optique de coupes transverses de faisceaux de fibres permet par ailleurs d'observer le remplissage des fibres, c'est-à-dire la présence ou non d'un lumen. Tous les lots étudiés ont été observés afin de vérifier le bon remplissage des fibres.

3.2. Observations par microscopie électronique à balayage

La microscopie électronique à balayage est utilisée pour observer la surface d'un échantillon à l'échelle micrométrique. Les observations sont effectuées sur des fibres brutes (faisceaux), des fibres unitaires (extraites des faisceaux), des préformes fibreuses, ou des échantillons de matériaux composites

Avant observation, les échantillons ont été recouverts d'une couche mince d'or par pulvérisation cathodique en utilisant un appareil Edwards Scancoat Six. Un microscope électronique à balayage Jeol JSM 6460LV a été utilisé.

Pour l'observation de la surface des faisceaux de fibres ou des fibres unitaires, les échantillons ont été collés sur un ruban adhésif de carbone permettant l'observation des échantillons dans la direction transverse à l'axe de la fibre

Pour l'observation des matériaux composites, les échantillons ont été inclus dans une résine époxy de coulée et polis pour pouvoir observer la section d'intérêt.

3.3. Outils d'analyse d'image

Les outils d'analyse d'image sont utilisés afin de détecter des zones d'intérêt d'une image de manière semi-automatisée.

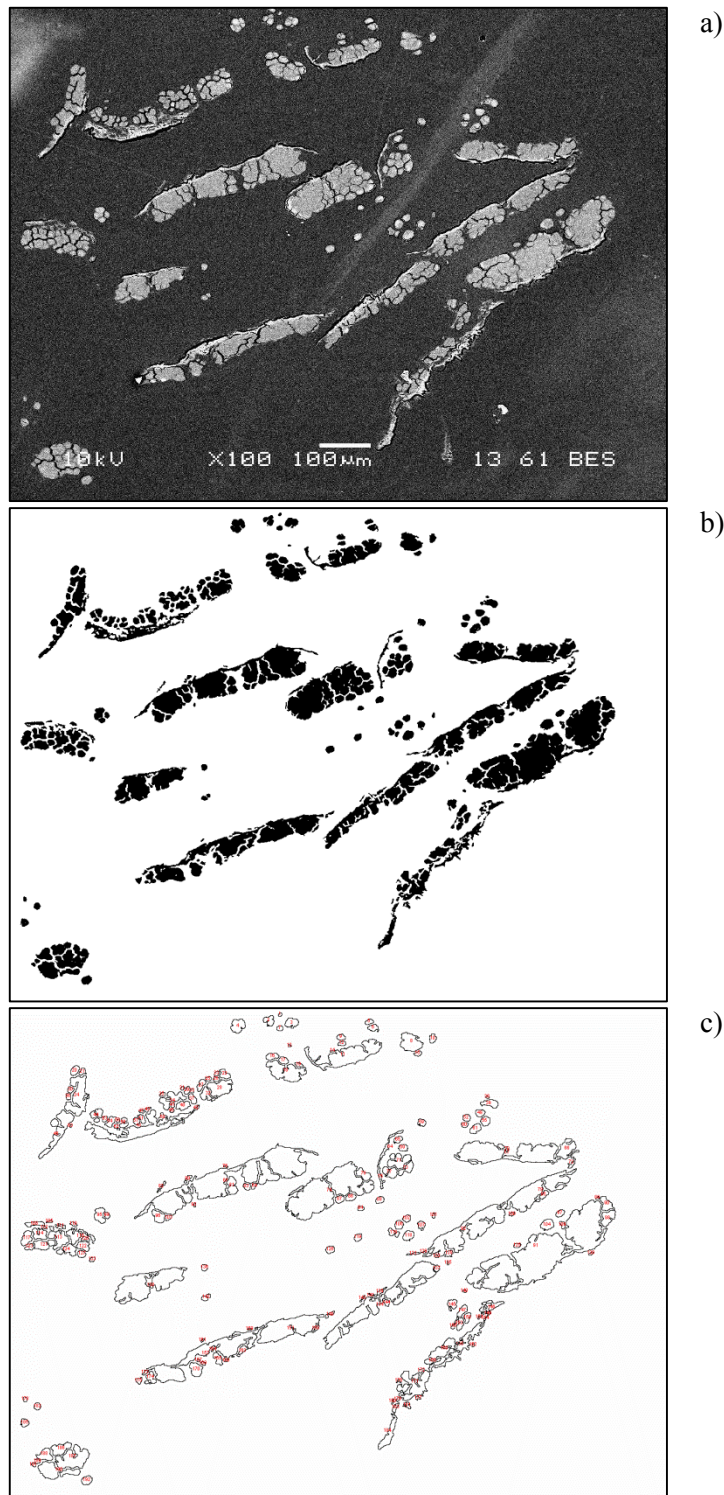


Figure 47 Etapes de l'analyse d'image avec ImageJ. a) Image MEB brute. b) Image binaire après seuillage. c) Détection de chaque objet présent sur l'image.

Dans ces travaux, l'analyse d'image est utilisée afin de déterminer la porosité et la fraction de fibres de composites UD ainsi que l'état de division de faisceaux de fibres. Les zones d'intérêt sont donc ici des fibres, ou des vides.

La procédure d'analyse d'image est réalisée à l'aide du logiciel ImageJ (Schneider et al., 2012). La procédure d'analyse de la section transverse de faisceaux de fibres de lin est détaillée ci-après (Figure 47). L'analyse est effectuée à partir d'images MEB de sections polies finement. Afin de séparer les fibres de la matrice, l'image d'origine (a) est tout d'abord transformée en image binaire à l'aide d'un seuillage noir et blanc (b). Les artefacts de l'image sont supprimés manuellement et un lissage est effectué pour atténuer le bruit de l'image. L'image obtenue contient le renfort en noir et la matrice en blanc. Une analyse des objets présents est ensuite effectuée afin de mesurer l'aire de chaque objet présent sur l'image (c).

3.4. Micro-tomographie à rayons-X assistée par ordinateur (Micro CT)

La tomographie à rayons X est une technique non destructive développée à l'origine pour des applications médicales. Elle permet de reconstruire une image en trois dimension d'un objet, à partir de mesures de l'atténuation des rayons X (Hounsfield, 1973). Cette technique permet d'examiner le cœur d'un échantillon sans l'endommager.

La micro-tomographie à rayons-X haute résolution assistée par ordinateur est utilisée ici. Cette technique a été utilisée par le passé par exemple pour évaluer la structure de matériaux composites injectés à matrice polyamide renforcés par des fibres courtes de verre (Bernasconi et al., 2008) ainsi que de matériaux sandwich mat de lin/PLA/balsa (Le Duigou et al., 2012) ou encore de composites miscanthus/PP ou miscanthus/PLA (Ragoubi et al., 2012).

Les mesures ont été effectuées à l'aide d'un appareil GE Phoenix V-TOM-X240 high-resolution microfocus assisté par ordinateur. Cet appareil permet d'atteindre une résolution maximale d'environ 20 μm (taille du pixel).

Une étude utilisant le même équipement de tomographie, montre un exemple d'utilisation pour l'étude d'un matériau sandwich à âme nid d'abeille et peau carbone/époxy haute performance (Davies et al., 2011).

Pour les travaux présentés dans ce manuscrit, la tomographie est utilisée pour évaluer l'organisation des renforts au sein d'un composite, l'organisation d'une préforme sèche ou la porosité de matériaux composites. Les mesures de porosité ont été effectuées en considérant

une limite basse de 8 voxels dans le but d'éviter la prise en compte du bruit dans les calculs de porosité. Le logiciel de traitement de données *MyVGL2.0* a été utilisé pour extraire les images.

Pour chaque analyse, les conditions d'essais seront données dans les chapitres correspondants.

4. MOYENS DE CARACTERISATION DES COMPOSITES

4.1. Evaluation de la fraction volumique de fibre

Pour certains composites, la fraction volumique de fibres a été estimée à partir de la masse volumique des composites (ρ_c), celle des fibres (ρ_f), et celle de la matrice (ρ_m), en utilisant la loi des mélanges ci-après:

$$\rho_c = \rho_f \times V_f + \rho_m \times (1 - V_f)$$

$$V_f = \frac{\rho_c - \rho_m}{\rho_f - \rho_m}$$

Les mesures de masse volumique des constituants ont été effectuées selon la norme ISO 1183-1 en utilisant la méthode par immersion. Des échantillons d'1g sont utilisés. De l'éthanol absolu est utilisé comme fluide d'immersion. La masse volumique est donnée par l'équation suivante:

$$\rho_m = \frac{m_{air}}{m_{air} - m_{eth}} (\rho_{eth} - \rho_{air}) + \rho_{air}$$

où ρ_m , m_{air} , m_{eth} , ρ_{eth} et ρ_{air} sont respectivement la masse volumique de l'échantillon mesuré, la masse de l'échantillon dans l'air, la masse de l'échantillon dans l'éthanol et les masses volumiques de l'éthanol et de l'air à la température de l'expérience. Les mesures sont réalisées sur trois échantillons par éprouvette.

4.2. Analyse de la géométrie des fibres après transformation des composites injectés.

Afin de pouvoir mesurer le rapport d'aspect des fibres contenues dans les composites injectés PP/lin, les renforts ont été extraits d'un échantillon après extrusion et injection des matériaux. Un échantillon d'éprouvette (1g) est introduit dans 100 mL d' o-xylene et le solvant est porté à reflux pendant une heure afin de solubiliser la matrice (Oksman et al., 2009). La solution est ensuite filtrée à l'aide d'un montage Büchner sous vide et le contenu du filtre est rincé avec de l'oxylène bouillant. Les fibres contenues dans le filtre sont séchées pendant 12h à 50°C afin d'évaporer les traces de solvant restantes.

Les longueurs et diamètres de 250 objets ont été mesurés en utilisant une loupe binoculaire, ainsi que le logiciel IM500. Les mesures sont effectuées après la découpe des fibres, après l'extrusion (granulés de compound) et après le moulage par injection des matériaux composites.

4.3. Détermination des propriétés mécaniques en traction

4.3.1. Matériaux injectées

Les essais de traction ont été effectués sur des éprouvettes de type haltères selon la norme ISO-527-2 (180x10x4 mm³). La machine utilisée est une MTS Synergie RT/1000. La capacité du capteur de force est de 10 kN. La déformation est mesurée à l'aide d'un extensomètre dont la longueur de jauge est 25 mm. La vitesse de déplacement de la traverse est de 1 mm.min⁻¹.

Le module d'Young est obtenu en calculant la pente de la courbe de traction dans la gamme de déformation : $\varepsilon_1 = 0,05 \%$ à $\varepsilon_2 = 0,25 \%$, d'après la norme ISO-527-2. Après essais, au moins 5 éprouvettes valides sont retenues. Le module d'Young, la contrainte maximale et la déformation à rupture moyen sont calculés.

4.3.2. Matériaux composites unidirectionnel (UD)

Les essais sont effectués sur les éprouvettes décrites au paragraphe 2.2. Une machine Instron 5566 est utilisée. La capacité du capteur de force est de 10 kN. La déformation est mesurée à l'aide d'un extensomètre dont la longueur de jauge est 25 mm. La vitesse de déplacement de la traverse est de 1 mm.min⁻¹. Le module de traction des matériaux est calculé

est mesurant la pente de la courbe de traction dans la gamme 1 à 1,1% et dans la gamme 0,05 à 0,25 % pour comparaison.

4.3.3. Matériaux mis en œuvre par thermocompression

Les conditions d'essais de traction sont les mêmes que pour les matériaux injectés. Les éprouvettes de traction sont usinées à l'aide d'une fraiseuse à commande numérique. Pour des raisons techniques (dimensions des plaques composites), les dimensions des éprouvettes sont réduites par homothétie par rapport aux dimensions de l'éprouvette haltère type 1B (150x10x2 mm³) prévues par la norme ISO 527-2. Les dimensions des éprouvettes ici sont de 100 x 7 x 2 mm³ (type 1BA de la norme ISO 527-2) pour les composites Lin/PLA et 130 x 8,5 x 2 mm³ pour les composites Lin/PP.

5. TEST STATISTIQUES

Le test t de Student est utilisé afin de comparer des moyennes mesurées sur des échantillons différents (Livingston, 2004). Les tests sont réalisés de manière informatisée à l'aide du logiciel Origin (OriginLab). Ce type de test suppose que les distributions des échantillons suivent une loi normale. Cependant il est possible de s'affranchir de cette condition si la taille de l'échantillon est assez élevée (>30), ce qui est le cas ici.

Le test t de Student vérifie l'hypothèse de nullité de la différence de deux moyennes. L'hypothèse nulle H_0 est définie par :

$$H_0: \mu_1 - \mu_2 = 0$$

où μ_1 et μ_2 sont les moyennes des échantillons.

Le test t à deux échantillons calcule la valeur t. Dans le cas de deux échantillons de tailles et de variances différentes, l'expression suivante de t est utilisée:

$$t = \frac{(\mu_1 - \mu_2)}{\sqrt{\frac{s_1^2}{n_1} + \frac{s_2^2}{n_2}}}$$

avec μ_1 et μ_2 , n_1 et n_2 , s_1 et s_2 respectivement les moyennes, tailles et variances des deux séries de données.

La valeur t est comparée à une valeur critique $t_{0,05}$ définie par la loi de Student pour le niveau de confiance 95 % et pour un degré de liberté v . v est défini par :

$$v = \frac{\left(\frac{s_1^2}{n_1} + \frac{s_2^2}{n_2} \right)^2}{\frac{\left(\frac{s_1^2}{n_1} \right)^2}{n_1 - 1} + \frac{\left(\frac{s_2^2}{n_2} \right)^2}{n_2 - 1}}$$

L'hypothèse nulle H_0 est rejetée si $|t| > t_{0,05/2}$ et dans ce cas les deux échantillons sont différents.

L'hypothèse nulle H_0 est acceptée si $|t| < t_{0,05/2}$ et dans ce cas les échantillons ne sont pas différents.

Le niveau de significativité du test est donné par la valeur p . Celle-ci correspond à la probabilité que l'hypothèse nulle soit vraie. Une faible valeur suggère de rejeter l'hypothèse nulle. Si la valeur p est inférieure à 0,05, l'hypothèse nulle est rejetée.

Chapitre III INFLUENCE DE L'ETAPE DE ROUISSAGE DU LIN

SUR LES PROPRIETES MECANQUES DES FIBRES ET SUR CELLES DE COMPOSITES INJECTES LIN/POLYPROPYLENE

A notre connaissance, la qualité du lin utilisé pour la fabrication de renforts de matériaux composites n'est pas établie à partir de critères mesurables. Les fibres utilisées pour la réalisation de préformes sont choisies par les producteurs sur la base de critères subjectif. A ce jour, il n'existe en effet pas ou peu de valeurs chiffrées permettant de comparer des lots de lin entre eux. Parmi les critères de qualité du lin, le degré de rouissage des fibres est un des critères important. Le rouissage du lin est l'étape pendant laquelle les tiges de lin sont déposées sur le champ afin que les ciments qui lient les fibres au reste de la plante soit dégradés. Le degré de rouissage est évalué de manière organoleptique, c'est-à-dire par observation de la couleur et de la finesse

Le degré de rouissage optimal, afin d'utiliser des fibres de lin en tant que renfort de matériaux composites, n'est pas connu. Sa contribution n'est prise en compte que dans très peu de travaux de la littérature. Etant donné la difficulté à prévoir et à contrôler le rouissage au champ, il est important de connaître l'influence du degré de rouissage sur les propriétés du lin et d'évaluer le rouissage après production des fibres.

Dans ce chapitre, le but est d'explorer des méthodes de mesure du degré de rouissage des fibres de lin, et d'étudier l'influence du degré de rouissage sur les propriétés mécaniques des fibres puis celles de composites injectés renforcés par des fibres courtes.

1. MATERIAUX DE L'ETUDE

1.1. Sélection des fibres

Le lin utilisé pour cette étude provient de la variété cultivée (cultivar) Alizée. Les plantes ont été cultivées en France, dans la région Nord-Pas de Calais en 2011. Les tiges de lin ont été arrachées le 29 juin et rouies au champ. Une série de six échantillons de pailles a été ramassée au cours du temps. Ces échantillons sont identifiés de R1 à R6. Dans cette étude, le degré de rouissage est assimilé à la durée de rouissage. Ce critère est choisi car il est le moins subjectif et le plus facilement mesurable. Le Tableau 7 présente les durées de rouissage des échantillons de paille. La parcelle de lin a été récoltée le 18 juillet, ce qui correspond à une durée de rouissage de 19 jours. Le temps de rouissage de 19 jours pour obtenir R6 est valable pour le champ et les conditions météorologiques de l'année de culture. Cette durée de rouissage est courte par rapport aux autres années à cause d'un faible rendement en paille (5052 kg.ha^{-1}) et donc de la faible épaisseur des andains, tandis que la moyenne des rendements pour les années 2000 à 2009 est de (6925 kg.ha^{-1}). Pour ce lot, l'arrachage a été effectué tôt. En général, les plantes de lin sont arrachées aux alentours du 15 juillet et le rouissage peut durer jusqu'à 2 mois, ce qui mène au début de l'automne.

Lot	R1	R2	R3	R4	R5	R6
Durée de rouissage (jours)	1	5	9	14	16	19

Tableau 7 Identification des échantillons prélevés et durées de rouissage correspondante.

L'échantillon R6 est considéré comme bien roui et correspond à une qualité standard d'un point de vue textile, tandis que l'échantillon R1 est non roui et les échantillons R2 à R5 sont considérés comme sous-rouis. Il est important de noter que le niveau de rouissage et les adjectifs sous roui, roui ou sur roui sont subjectifs. Pour un professionnel du lin, un lin dont le rouissage est optimal est un lin suffisamment roui pour que les fibres soient facilement extraites des tiges et donnent une matière fine, mais pas trop roui afin de conserver un rendement de production acceptable industriellement. Il faut avoir à l'esprit que la durée de rouissage n'est pas établie théoriquement et dépend de l'expérience des agriculteurs. L'arrivée de l'automne, s'accompagnant généralement par la diminution des températures et l'augmentation des précipitations est un risque majeur. En effet, la paille doit être suffisamment sèche pour être enroulée et stockée sans risque de développement de

moisissures durant le stockage. Le rouissage devient alors un dilemme entre récolter un lin dont la finesse de fibre sera moyenne ou alors améliorer la qualité de la matière mais avec un risque de perte conséquent. Si le degré de rouissage n'est pas suffisant au début du mois de septembre, il est préférable de rentrer la récolte afin d'éviter les pluies de l'automne et la perte de la récolte si les pailles ne sèchent pas. D'une manière générale, on cherche à minimiser le temps où les pailles sont sur le champ, afin d'éviter le sur rouissage et la dégradation des fibres.

La Figure 48 donne les conditions météorologiques pendant la période de rouissage. La température journalière est définie par la somme de la température minimale et de la température maximale divisée par deux. Les précipitations sont données en mm ($l.m^{-2}$).

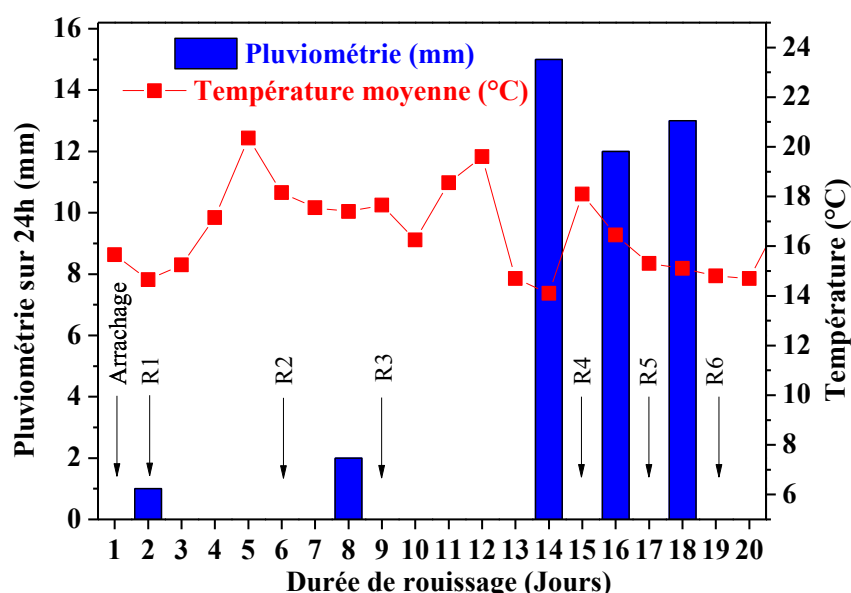


Figure 48 Précipitations, température moyenne quotidienne au cours de la période de rouissage et dates de collecte des échantillons.

Lors de la période de rouissage la température moyenne minimale est de 14°C, ce qui est une température favorable pour le rouissage (Bert, 2013). Les précipitations sont presque inexistantes de l'arrachage jusqu'au 13^e jour de rouissage, mais la rosée apporte aussi de l'humidité. Cette période sans pluie a permis aux plantes de faner. Puis il a plu de manière faible à modérée à partir du 14^e jusqu'au 18^e jour, avant le ramassage du dernier échantillon. Après la récolte, les pailles ont été stockées dans un hangar à l'abri de l'humidité. Ces pailles ont été teillées par la société Van Robaeys Frères afin d'en extraire les fibres. Les pailles ont été teillées avec les mêmes réglages de machine pour chaque lot. La vitesse de batteur était de 200 $t.min^{-2}$. La vitesse d'avance de la ligne (courroies) était de 80 $m.min^{-1}$.

Pour la réalisation des compounds, les fibres teillées ont été coupées à l'aide d'une coupeuse guillotine, à une longueur de 3 mm.

1.2. Matrice utilisée

Le polymère utilisé comme matrice pour la mise en œuvre des matériaux composites est le polypropylène (PP) référence PPC 10642 fourni par Total Petrochemicals. Afin d'améliorer la compatibilité entre la matrice et les renforts, 4 % en masse d'un agent comptabilisant est ajouté à la matrice PP. Ce composé est fourni par Arkema sous la référence Orevac CA100. Il est composé de polypropylène sur lequel est greffé de l'anhydride maléique (PPgMA). Les compounds ont été réalisés par extrusion et injection comme défini dans le chapitre 2.

2. RESULTATS ET DISCUSSIONS

Pour certains essais, les mesures sont limitées aux fibres R1, R3 et R6 pour des raisons pratiques

2.1. Evaluation du degré de rouissage

2.1.1. Evaluation de la couleur des fibres teillées

Lors du classement des fibres en fin de production, la couleur est un critère d'évaluation de la qualité des lins teillés. Cette couleur est alors reliée au niveau de rouissage et par conséquent à la finesse et à la propreté des fibres. La Figure 49 est une photographie des six échantillons de lin teillé, des fibres les moins rouies à gauche vers les fibres les plus rouies à droite. Une différence de couleur significative peut-être observée à l'œil nu entre les différents lots de fibre. Les fibres du lot R1, dont les pailles sont restées une journée sur le champ, ont une couleur vert-jaune, tandis que les fibres du lot R6, dont les pailles ont été rouies 19 jours, ont une couleur gris foncé. Les fibres du lot R3 et R4 dont les pailles ont été rouies 9 et 15 jours ont une couleur marron. Ce type de changement de couleur a été rapporté dans la littérature par Pallesen (1996).



Figure 49. Photographie des fibres brutes. Des fibres les moins rouies à gauche vers les fibres les plus rouies à droite. La barre d'échelle représente environ 10 cm

Afin de pouvoir comparer les lots entre eux de manière chiffrée, des analyses par spectrophotométrie ont été effectuées. Ces analyses permettent de mesurer la réponse spectrale des fibres à une sollicitation lumineuse. Cette réponse spectrale est convertie en coordonnées colorimétriques CIELAB.

Lot de fibres	R1	R2	R3	R4	R5	R6
L (s.u)	70,6	67,6	62,4	52,2	50,1	50,8
A (s.u)	3,6	4,9	5,0	3,4	2,0	2,6
B (s.u)	24,9	25,6	24,1	18,7	13,4	13,0

Tableau 8. Coordonnées colorimétriques CIEL*a*b* en fonction du temps de rouissage. s.u : sans unité.

Le Tableau 8 présente les résultats de mesure de couleur par spectrophotométrie. L'évolution des paramètres L^* , a^* et b^* traduit l'évolution de couleur des échantillons. La luminance L diminue avec le degré de rouissage. Le paramètre b^* augmente tout d'abord de R1 à R2 et ensuite diminue significativement à partir de R3. Le paramètre a^* augmente de R1 à R3, et ensuite une chute est observée pour R4 et R5, puis une légère augmentation pour R6. L'évolution des coordonnées colorimétriques a^* et b^* entre R1 et R3 sont reliées à la transition du jaune à l'orange. La diminution des composantes a^* et b^* de R4 à R6 correspond au passage de la couleur orange à gris visible sur la Figure 49. La transition de la couleur jaune des fibres non rouies, à la couleur gris foncée des fibres rouies peut être attribuée à la

colonisation des champignons pendant le rouissage. Les différents champignons colonisent petit à petit les tiges et donnent cette couleur caractéristique aux fibres rouies au champ. Même si la couleur des matériaux n'est en général pas un critère de sélection, il faut noter que dans ce cas, la couleur des fibres permet d'établir un classement du degré de rouissage. La spectrocolorimétrie peut facilement être utilisée pour évaluer le degré de rouissage des fibres de lin en évitant une évaluation organoleptique imprécise et peu reproductible. Cette méthode de mesure permet en effet, d'obtenir des coordonnées colorimétriques absolues, permettant la comparaison avec d'autres lots dans le cadre d'un contrôle de manière industriel.

2.1.2. Observations de la surface des faisceaux par microscopie électronique à balayage

Afin d'étudier l'influence de l'étape de rouissage sur l'état de surface des faisceaux, des observations ont été réalisées par microscopie électronique à balayage.

La Figure 50 regroupe des images en microscopie électronique à balayage des faisceaux de fibres de lin pour R1, R3 et R6 après teillage. Les fibres sont organisées sous forme de faisceaux pour les 3 lots. L'échantillon R1 présente une surface très brute, recouverte de ce qui pourrait être l'écorce (parenchyme cortical). La surface des fibres unitaires n'est pas visible. L'échantillon R3 est également recouvert par la couche de parenchyme cortical, mais la surface de quelques fibres unitaires est visible. Pour l'échantillon R6, les fibres restent sous forme de faisceaux, mais les tissus corticaux ont été enlevés pendant le teillage, facilité par le rouissage.

La Figure 50 F) met en évidence la surface de la paroi primaire des fibres unitaires. Les lamelles mitoyennes ont été en partie dégradées, laissant apparaître la paroi primaire des fibres. Beaucoup de fibres unitaires sont dissociées les unes des autres, cependant la matière corticale restante suffit à maintenir la cohésion globale du faisceau. Il est peu évident de quantifier une évolution de l'état de division des faisceaux à l'aide d'images MEB des surfaces. Cependant, on observe clairement une réduction des matières présentes en surface des faisceaux de fibres.

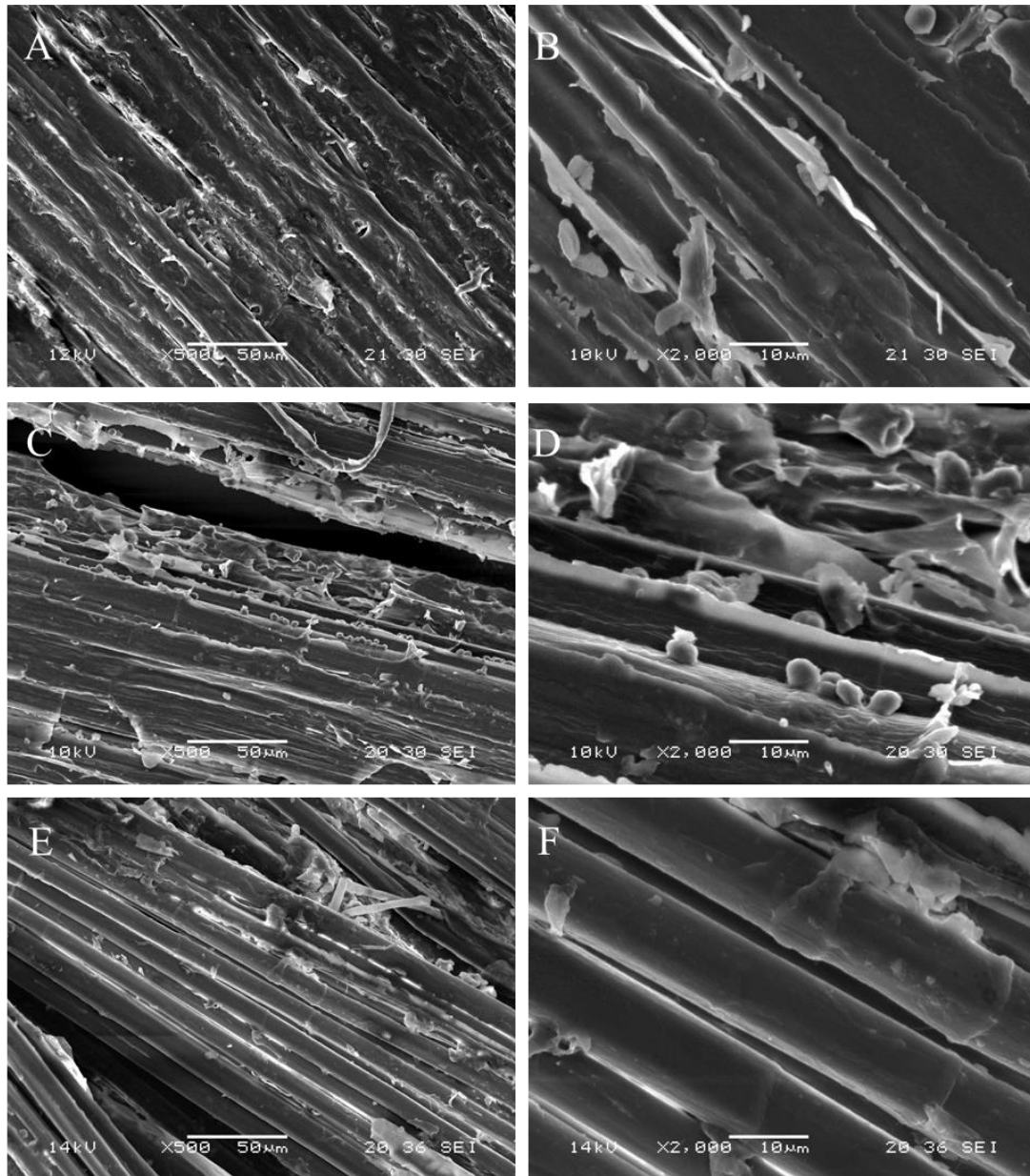


Figure 50 Image MEB des échantillons R1 (A) et (B), R3 (C) et (D), et R6 (E) et (F). Le grossissement est x500 sur la colonne de gauche et x2000 sur la colonne de droite.

2.1.3. Extractions chimiques

Des extractions chimiques ont été utilisées afin d'évaluer la quantité de matière restante à la surface des faisceaux après l'étape de rouissage et de teillage, en mesurant les pertes de masse après extraction. Le Tableau 9 présente les pertes de masses des échantillons de fibres, après chaque étape d'extraction. Ces essais permettent d'évaluer la quantité de matière qui n'aurait pas été dégradée et éliminée pendant le rouissage et le teillage.

Perte de masse (%)				
	A f H ₂ O 23°C	B : H ₂ O 100°C	C : EDTA 100°C	B+C
R1	16,2 ± 1,4	5.8 ± 2.8	14.9 ± 4.1	20.6 ± 5
R2	12,3 ± 0,3	6.9 ± 0.2	9.4 ± 0.4	16.2 ± 0.5
R3	16,2 ± 1,4	7.5 ± 0.3	8.3 ± 0.1	15.76 ± 0.4
R4	17,9 ± 1,4	6.1 ± 0.7	6.6 ± 0.6	12.7 ± 0.9
R5	16,1 ± 0,9	4.4 ± 0.6	5.7 ± 0.3	10.2 ± 0.7
R6	6,2 ± 1,7	4,8 ± 0.4	5,6 ± 1.6	10.5 ± 1.4

Tableau 9Quantité de matière perdue après les différentes extractions

La première étape (A) est un lavage des fibres à l'eau distillée à température ambiante, elle permet de retirer les éléments faiblement adhérent à la surface, c'est-à-dire de la poussière, des anas, des matières minérales et organiques provenant du champ (terre). Les pertes de masse pendant cette étape sont élevées et ne sont probablement pas pertinentes, les fibres sont agitées à la main dans une bassine et des fibres peuvent être perdues. Cette étape permet de préparer les échantillons pour les extractions et de retirer des éléments pouvant perturber l'analyse des résultats par la suite (poussière, élément étranger). Le poids final des fibres après le lavage (A) est utilisé comme référence pour le calcul de perte de masse.

L'extraction à l'eau bouillante (B) (3x 1h) est utilisée pour extraire des composés de surface des faisceaux de fibres et une partie de la paroi primaire des fibre unitaires (Bourmaud et al., 2010). Lors de la dernière extraction (C), l'EDTA contenu dans la solution peut rompre des complexes de pectate de calcium par un mécanisme de chélation (Goubet et al., 1995; Morvan et al., 2003). Ces complexes sont présents dans les jonctions tricellulaires (Jauneau et al., 1992). Cette étape, suivie de 2 autres extractions à l'eau bouillante permet d'extraire les matières restantes à la surface des faisceaux.

Les travaux de Bourmaud et al. (2010) rapportent une perte de masse de 15 % pour des lins peu rouis, après un traitement à l'eau à température ambiante, suivi d'un traitement à l'eau bouillante. Les composés extraits étaient du glucose, du galactose, des homogalacturonanes et des rhamnogalacturonanes de type I.

D'après une étude d' Alix et al. (2012), les pertes de masse après ce type de traitement sont de 15 % pour du lin vert et 5,6 % pour du lin roui pendant 6 semaines.

Dans notre cas, la quantité de matière totale perdue pendant la série de traitement diminue avec l'augmentation du degré de rouissage des fibres, ce qui confirme la dégradation de certains composés pendant le rouissage, notamment le parenchyme cortical et les lamelles mitoyennes. Les fibres les moins rouies contiennent une plus grande proportion de composés de surface. Ce résultat est en accord avec les observations réalisées par microscopie

électronique à balayage, dans lesquelles des résidus de tissus corticaux sont retrouvés à la surface des faisceaux de fibres R1 et R3.

La perte de masse résiduelle après un rouissage de 19 jours (R6) indique qu'une certaine quantité de matière subsiste en surface des fibres et entre les faisceaux. Même après un rouissage dit optimal pour un usage textile, une certaine quantité de matière subsiste sur les faisceaux de fibres.

2.1.4. Analyse thermogravimétrique (ATG)

L'analyse permet ici d'évaluer la dégradation des fibres de lin lors d'un chauffage. L'analyse thermogravimétrique a été utilisée par Sharma et Kernaghan (1988) afin d'évaluer le comportement en température des fibres de lin et par la suite pour évaluer le degré de rouissage (Sharma et al., 1999; Sharma et Faughey, 1999; Van de Velde et Baetens, 2001)

La Figure 51 représente les courbes de perte de masse des fibres en fonction de la température ainsi que les courbes de la dérivée de la masse pour les degrés de rouissage R1, R3, R6. Trois pertes de masse sont observées. La première perte de masse correspondant à la perte d'eau, la deuxième perte comprise entre 200 et 400 °C correspond à la dégradation des pectines, hémicelluloses et cellulose (Sharma et Kernaghan, 1988) et la troisième correspond à la dégradation des substances non polysaccharidiques tels que des phénols (Sharma et al., 1996). Il n'y a pas à notre connaissance, d'étude dans la littérature traitant de la dégradation thermique des pectines issues de fibres de lin. Cependant, selon Ghaffari et al. (2007), les pectines d'agrumes se dégradent à 200 °C. Les polysaccharides constituant les fibres peuvent être dépolymérisés entre 200 °C et 400 °C et former des sous-produits se dégradant à des températures plus élevées (Van de Velde et Baetens, 2001). La masse restante (résidus) après la stabilisation correspond à la teneur en cendres.

Le Tableau 10 récapitule les pertes de masse et les températures de dégradation en fonction du rouissage relevées par ATG. Pour les mêmes conditions de conservation, le pourcentage d'eau contenu dans les fibres est identique. Le rouissage n'a pas d'influence sur le contenu en eau des fibres dans ces conditions (50 % HR). Les teneurs en eau, mesurées à la 1^{ère} perte de masse, sont inférieures à celles retrouvées dans la littérature : 8,4 % (Baley et al., 2005) et 8,3-9,4 % (Van de Velde et Baetens, 2001).

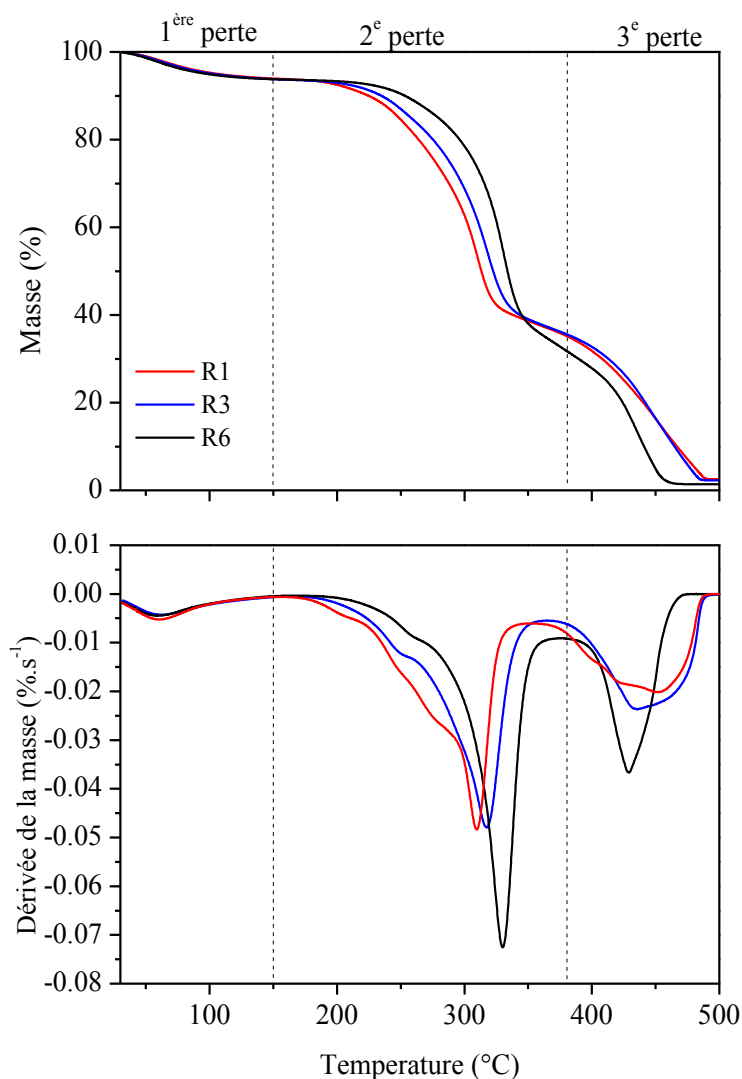


Figure 51 Analyse thermogravimétrique des échantillons. a) Perte de masse en fonction de la température. b) Dérivée de la masse en fonction de la température (vitesse de dégradation).

Une augmentation de la 2^e perte de masse est observée avec l'augmentation du degré de rouissage, de respectivement 55,5 % à 60,9 % pour R1 et R6. En parallèle, la 3^e perte de masse diminue de 35,4 % pour R1 à 31,4 % pour R6. Au cours du rouissage, les pectines sont dégradées, augmentant la proportion relative de cellulose et d'hémicelluloses, ce qui explique l'augmentation de la deuxième perte de masse avec le degré de rouissage.

Lot	1 ^{ère} perte (%)	T (°C)	2 nd perte (%)	T (°C)	3 ^e perte (%)	T (°C)	Résidus
R1	6,4 ± 0,5	62 ± 3	55,5 ± 0,2	310 ± 0,4	35,4 ± 0,6	446 ± 4	2,7 ± 0,2
R3	6,4 ± 0,2	58 ± 2	56,4 ± 0,2	316 ± 0,3	34,5 ± 0,3	441 ± 3	2,7 ± 0,1
R6	6,2 ± 0,1	57 ± 2	60,9 ± 0,0	331 ± 0,7	31,4 ± 0,1	427 ± 3	1,5 ± 0

Tableau 10 Résultats de l'analyse thermogravimétrique. Perte de masse et température de dégradation correspondante. Trois mesures sont réalisées par échantillon.

Cette augmentation de la deuxième perte de masse est cohérente avec les études précédemment publiées (Sharma et al., 1999; Sharma et Faughey, 1999; Van de Velde et Baetens, 2001). La dégradation des fibres les moins rouies se produit à plus basse température, ce qui peut s'expliquer par la dégradation précoce des composés présents à la surface des échantillons.

La masse résiduelle restante après essais diminue également avec le rouissage. Elle peut être attribuée à la diminution des minéraux présents, notamment les complexes de calcium éliminés pendant le rouissage.

2.1.5. Mesure de la sorption d'eau des fibres en fonction de l'humidité relative

La Figure 52 montre les résultats d'essais d'absorption d'eau en fonction de l'humidité relative. Les fibres (R1,R3,R6) ont été conservées pendant 8 jours à une humidité relative de 50 % et une température de 23°C avant essai, et celles-ci n'ont pas été étuvées pour éviter une modification des parois végétales, car un séchage excessif peut modifier la sensibilité des parois face à l'humidité (Baley et al., 2005).

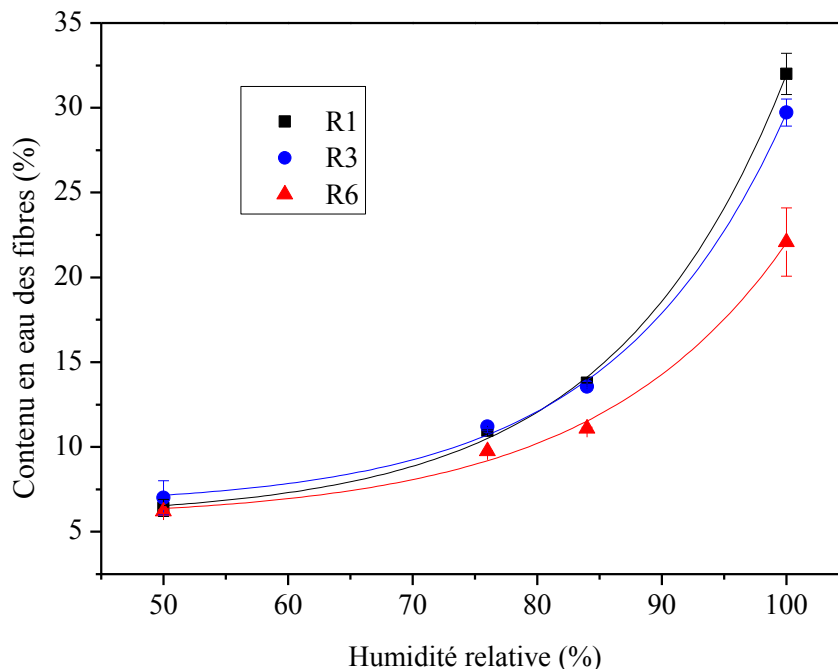


Figure 52 Evolution du contenu en eau des fibres en fonction de l'humidité relative.

Pour faciliter la lecture des données, le taux d'humidité des fibres vierges, déterminé par ATG, a été ajouté aux données présentées. On note une prise de masse plus importante pour R1 et R3 par rapport à R6, ce qui indique une prise d'eau plus élevée pour les fibres les moins rouies. Les différences s'accroissent avec l'augmentation de l'humidité relative.

Ces observations sont en accord avec les travaux d'Alix et al. (2012) qui rapportent une prise d'eau plus importante pour des fibres issues de pailles rouies 1 semaine, par rapport à des pailles rouies 6 semaines.

Pour un taux d'humidité de 100 %, la prise d'eau de l'échantillon R1 est de 32 % et celle de l'échantillon R6, de 22 %. Cette dernière valeur est en accord avec celles publiées par Hill et al. (2009) qui rapportent une prise d'eau de 20 % sous une humidité relative de 95 % pour des fibres rouies au champ. Stamboulis et al. (2000) rapportent une prise d'eau de 42.6 % à 100 % d'humidité relative pour du lin vert.

Dans ce travail, une influence forte du degré de rouissage sur la prise d'eau des fibres est identifiée. Dans les plantes à fibres, l'eau est liée aux groupes hydroxyles en surface et au sein des fibres, plus particulièrement au pectines (Baley et al., 2005). De ce fait, les différences de prise d'eau entre fibres rouies et fibres non rouies peuvent être reliées à la suppression des substances pectiques, principalement originaire des lamelles mitoyennes. Ce type de contrôle pourrait être envisagé comme moyen de mesure du degré de rouissage.

2.1.6. Etat de division des faisceaux

Afin d'évaluer l'influence du degré de rouissage sur l'état de division des faisceaux de fibres de lin, des vues en coupe transverses de faisceaux ont été observées au MEB pour les trois lots R1, R3, R6. Les surfaces des objets observés ont été mesurées grâce au logiciel Image J, selon la procédure décrite dans le chapitre II.3.3. Les échantillons à analyser sont enrobés dans une résine de coulée, puis leur section est polie avant observation. L'analyse est effectuée à partir de 5 clichés MEB au grossissement $\times 100$, pour chacun des lots R1, R3 et R6. La Figure 53 présente un exemple d'images MEB brutes ainsi que les images correspondantes après un seuillage en noir et blanc. On note tout d'abord que les échantillons R1 et R3 contiennent des résidus de tissus corticaux, et des particules entières de xylème. L'échantillon R6 ne contient pas de résidus de xylème, ceux-ci ont pu être retirés lors du teillage, grâce à l'action du rouissage. Cependant des tissus corticaux résiduels sont présents et maintiennent plusieurs faisceaux entre eux.

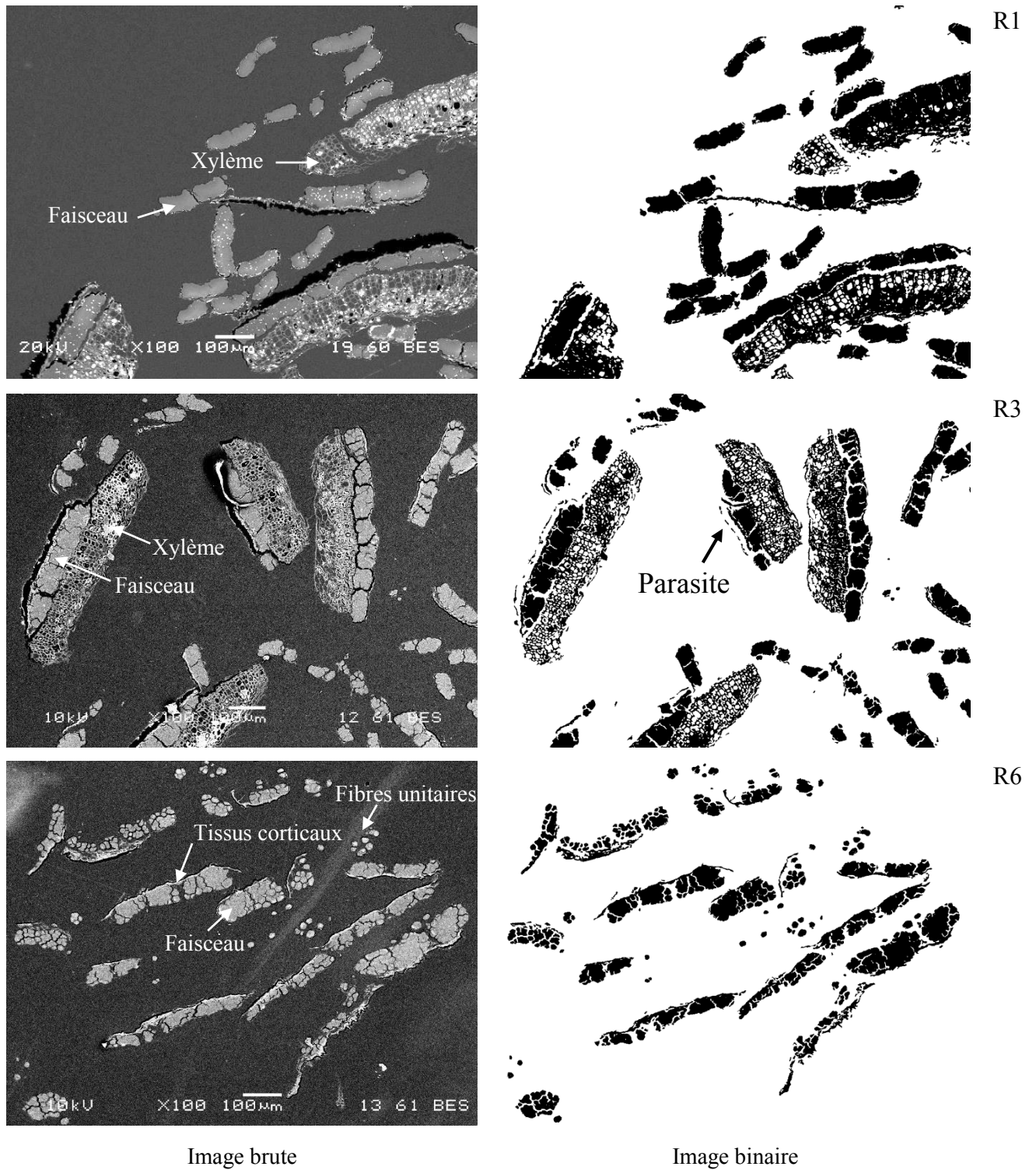


Figure 53 Vue en coupe de faisceaux de fibres de lin de trois échantillons des lots R1, R3 et R6. (a) Image MEB brute. (b) Image binaire après un seuillage noir et blanc.

Il faut noter que l'analyse d'image effectuée ici prend en compte les xylèmes résiduels et les tissus corticaux présents à la surface des faisceaux (Figure 53). Par ailleurs, la présence de ces derniers peut créer des phénomènes parasites lors de la mesure (flèche image binaire R3). Ces parasites de faibles dimensions sont considérés comme des fibres élémentaires et

faussent ainsi la mesure (Figure 53). La proportion de fibres unitaires est donc difficilement mesurable pour R1 et R3. Les comparaisons entre lots seront donc uniquement basées sur l'aire moyenne des objets plutôt que sur la proportion de fibres unitaires.

Le Tableau 11 présente les résultats de l'analyse d'image effectuée sur les coupes transverses des échantillons de fibres. La forte dispersion des valeurs pour R1 et R3 s'explique par la présence de groupes de faisceaux liés par des tissus corticaux et des résidus de xylème.

Echantillons	Surface totale étudiée (μm^2)	Aire moyenne des objets (μm^2) (mini-maxi)
R1	1054835	19500 (20-180725)
R3	528151	3894 (20-86980)
R6	473696	507 (20-5730)

Tableau 11 Résultats des analyses de coupes transversales de faisceaux de fibre de lin issus des lots R1, R3 et R6. Les valeurs entre parenthèses sont le minimum et le maximum.

La diminution de l'aire des objets de R1 à R6 est très élevée. Cette diminution est expliquée par la suppression des particules de xylème lors du teillage. Le degré de rouissage influence donc la finesse des faisceaux de fibres, c'est-à-dire l'aire moyenne des sections transverses des faisceaux.

L'analyse de section transverse de faisceaux est développée plus en détails dans le chapitre IV, où celle-ci est utilisée sur des fibres issues de filasse et d'étoupes.

2.2. Propriétés mécaniques en traction des fibres unitaires

2.2.1. Evolution du diamètre des fibres

La représentativité des prélèvements de fibres utilisés pour les essais de traction est tout d'abord évaluée. Le Tableau 12 montre le diamètre moyen des fibres unitaires de chaque lot (\emptyset lot) et celui des fibres utilisées pour les essais de traction (\emptyset traction) afin de pouvoir les comparer. Le diamètre \emptyset lot et le diamètre \emptyset traction pris deux à deux pour un même niveau de rouissage, ne sont pas significativement différents ($p > 0,05$). Les fibres sélectionnées pour la traction sont considérées comme représentatives du lot.

Lot	Ø lot (µm)	Ø traction (µm)	E (GPa)	σ (MPa)	A (%)
R1	13,3 ± 3,9	14,0 ± 2,8	38,6 ± 17,3	792 ± 374	2,2 ± 0,7
R3	13,0 ± 4,0	14,5 ± 2,6	48,6 ± 11,8	935 ± 317	2,2 ± 0,7
R6	14,8 ± 4,4	15,9 ± 2,5	55,6 ± 11,8	1036 ± 270	1,9 ± 0,5

Tableau 12 Propriétés mécaniques des fibres unitaires pour les trois degrés de rouissage.

Les diamètres moyens des fibres R1 et R3 ne sont pas différents ($P > 0.05$). Cependant le diamètre moyen des fibres R6 est supérieur au diamètre moyen des fibres R1 ($P < 0,001$). Par contre, le diamètre des fibres augmente significativement avec le degré de rouissage. Cette augmentation est observée sur le diamètre du lot et sur le diamètre des fibres utilisées pour la traction. On aurait pu s'attendre à une diminution des diamètres moyens due à une perte de matière lors du rouissage. Cependant, les travaux de Bourmaud et al. (2010) rapportent une augmentation du diamètre moyen suite à un traitement effectué sur du lin faiblement roui. Les auteurs justifient ce changement par le relâchement des contraintes résiduelles par les fibres unitaires au sein du réseau pectique à l'intérieur de la paroi primaire après le retrait des lamelles mitoyennes enrichies en polysaccharides de type homogalacturonane lié à des ions de calcium.

2.2.2. Evolution des propriétés mécaniques des fibres

Le Tableau 12 regroupe les résultats d'essais de traction sur fibres unitaires. Les valeurs de module d'Young, contrainte à rupture et déformation à rupture sont présentées.

On note une augmentation des propriétés des fibres avec le rouissage. Le module d'Young et la contrainte à rupture des fibres unitaires augmentent ($P < (0,001)$ et ($P < (0,01)$), la dispersion des valeurs tend à diminuer avec l'augmentation du degré de rouissage.

L'action enzymatique et la dégradation de certains composés pourraient être à l'origine d'une évolution de la composition biochimique et structurale des fibres et cela expliquerait les différences de propriétés mécaniques des fibres. Les travaux de Pallesen, (1996) montrent une augmentation de la proportion de cellulose des fibres de lin avec le degré de rouissage, de 70 à 76 %. La cellulose est le constituant majoritaire des fibres de lin et celui qui contribue majoritairement à la résistance mécanique des fibres. L'augmentation de sa proportion pourrait expliquer l'augmentation des propriétés mécaniques de fibres unitaires de lin.

Le Tableau 13 permet de comparer les données obtenues avec les valeurs de propriétés mécaniques de fibres unitaires de lin trouvées dans la littérature. Ces études ont été effectuées sur la même machine de traction et sous les mêmes conditions d'essais. Les propriétés mécaniques obtenues dans cette étude sont dans la même gamme et les dispersions des valeurs de module d'Young et contrainte à rupture sont plus faibles par rapport aux données de la littérature, surtout pour le lot R6. Plusieurs études ont été précédemment publiées au sujet des propriétés mécaniques des fibres de lin en fonction de la durée de rouissage, cependant, les différents résultats ne font pas consensus. Van de Weyenberg et al. (2003) ont rapporté des propriétés mécaniques de faisceaux de fibres pour des lins verts, demi rouis et rouis. Les contraintes à rupture sont respectivement 68,9 ; 72,8 et 71 cN.tex⁻¹.

Variété	Référence	Diamètre moyen (μm)	E (GPa)	σ (MPa)	A (%)
Ariane	(Baley, 2002)	17,8 ± 5,2	54,1 ± 15,1	1339 ± 486	3,3 ± 0,8
Electra	(Bourmaud et al., 2010)	15,4 ± 4,9	51,1 ± 15,0	808 ± 342	1,6 ± 0,5
Oliver	(Bourmaud et al., 2013b)	17,5 ± 3,6	47,2 ± 21,3	751 ± 414	1,7 ± 0,6
Marylin	(Bourmaud et al., 2013a)	15,85 ± 3,9	53,8 ± 14,3	1215 ± 500	2,2 ± 0,6
Alizée	(Roussière et al., 2012)	15,20 ± 3,3	47,9 ± 16,1	1012 ± 391	2,3 ± 0,7
Oliver	(Pillin et al., 2011)	15,3 ± 4,5	55,5 ± 20,9	899 ± 461	1,7 ± 0,6
R1	/	13,3 ± 3,9	38,6 ± 17,3	792 ± 374	2,2 ± 0,7
R3	/	13,0 ± 4,0	48,6 ± 11,8	935 ± 317	2,2 ± 0,7
R6	/	14,8 ± 4,4	55,6 ± 11,8	1036 ± 270	1,9 ± 0,5

Tableau 13 Comparaison entre les propriétés mécaniques des fibres unitaires pour R1, R3 et R6 et les propriétés mécaniques de fibres unitaires de lin roui au champ retrouvées dans la littérature. Les essais sont réalisés avec un protocole identique, sur la même machine, avec les mêmes conditions environnementales.

Van de Velde et Baetens (2001) ont étudié les propriétés en traction de faisceaux de fibres de lin pour plusieurs degrés de rouissage. La contrainte à rupture était plus faible pour le premier niveau de rouissage, cependant le comportement en traction d'un faisceau est différent de celui d'une fibre unitaire. En effet, pour une fibre unitaire, seules les parois cellulaires d'une fibre sont sollicitées, ce qui mène à une rupture directe de la fibre. Pour un faisceau, plusieurs fibres ainsi que les lamelles mitoyennes sont sollicitées en même temps. La rupture peut intervenir par rupture des fibres individuelles et/ou par cisaillement des lamelles mitoyennes entraînant des modes de rupture complexes. Alix et al. (2012) rapportent des propriétés mécaniques en traction équivalentes entre des faisceaux issus de fibres de lin vert et

de lin roui. Les mêmes conclusions sont faites pour les propriétés des fibres unitaires. Les travaux de Pillin et al. (2011) ont comparé l'influence de deux degrés de rouissage sur les propriétés mécaniques de fibres unitaires de lin provenant de lin oléagineux. Les valeurs de contraintes à rupture et module d'Young étaient plus élevées pour les fibres de lin les plus rouies mais considérées équivalentes étant donné les écart-types élevés.

2.3. Propriétés des matériaux composites

2.3.1. Microstructure

Dans cette partie, la microstructure des matériaux composites (éprouvette injectées) est étudiée afin d'évaluer l'effet du degré de rouissage sur l'organisation des fibres au sein de la matrice polymère.

2.3.1.1. Evolution des dimensions des fibres à chaque étape de la mise en œuvre des matériaux composites.

Pour comprendre les différences entre les propriétés mécaniques des matériaux injectés, la morphologie des renforts a été étudiée après chaque étape de la mise en œuvre. En effet, le rapport d'aspect des renforts est un paramètre important pour le transfert de charge entre le renfort et la matrice.

Les diamètres et longueurs des fibres brutes ont été mesurés directement après découpe. Par contre, après compoundage et après injection, les renforts ont été extraits des composites par voie chimique.

Le Tableau 14 présente les longueurs, diamètres et rapport d'aspect des fibres brutes, après compoundage par extrusion, et après injection des éprouvettes de traction. Pour les fibres brutes, la longueur moyenne est proche de 3 mm pour les 3 lots, ce qui met en évidence la précision du processus de découpe. Les valeurs de diamètres moyens des objets mesurés indiquent que les renforts sont majoritairement sous la forme de faisceaux pour les 3 lots, le diamètre moyen des fibres unitaires étant de 14µm environ.

Lot	Longueur (μm)	Diamètre (μm)	Rapport d'aspect L/d
Fibres brutes			
R1	3080 ± 844	175 ± 131	24 ± 13
R3	3038 ± 668	172 ± 128	27 ± 21
R6	3037 ± 540	192 ± 134	26 ± 22
Après compoundage			
R1	592 ± 366	74 ± 46	11 ± 8
R3	513 ± 280	74 ± 52	10 ± 7
R6	367 ± 223	34 ± 27	14 ± 9
Après injection			
R1	351 ± 188	44.7 ± 28.1	10.7 ± 8.1
R3	316 ± 166	36.7 ± 25.5	11.0 ± 6.9
R6	257 ± 116	20.5 ± 6.2	13.5 ± 7.0

Tableau 14 Dimensions initiales des fibres brutes puis après compoundage et après injection

Le diamètre moyen des faisceaux n'est pas affecté par le rouissage, les diamètres des 3 lots n'étant pas significativement différent ($P > 0.05$). Le rouissage a fragilisé les lamelles mitoyennes mais les faisceaux ne sont pas plus divisés. Les mêmes conclusions sont également tirées des observations par MEB des faisceaux. En conséquence, les rapports d'aspect des fibres ne sont pas différents. Au vu des mesures, la morphologie initiales des fibres brutes n'est pas affectée par le degré de rouissage, cependant la mesure du diamètre des faisceaux effectuée ici ne permet pas de prendre en compte la division des faisceaux observée au MEB (section 2.1.6).

Après compoundage, une diminution de la longueur des fibres, des diamètres et des rapports d'aspect est observée, par rapport aux dimensions d'origine des fibres brutes. Lors de l'extrusion les faisceaux de fibres sont divisés et raccourcis par cisaillement. Les faisceaux sont séparés par la rupture des lamelles mitoyennes (Beaugrand et Berzin, 2013; Le Duc et al., 2011). Les longueurs et diamètres moyens sont plus faibles pour les fibres plus fortement rouies. Ces plus faibles valeurs pourraient être expliquées par la plus grande facilité d'individualisation des faisceaux de fibres en fibres individuelles. Cette plus grande tendance à la division, au cours de l'extrusion explique, une valeur de rapport d'aspect plus élevé pour R6 ($P < 0.01$)

Suite à l'étape d'injection, les longueurs et les diamètres des fibres ont été réduits, par rapport aux dimensions après extrusion. L'étape d'injection accentue la division des faisceaux de fibres. Cependant les rapports d'aspect après injection ne sont pas modifiés en comparaison des rapports d'aspects post compoundage. Les valeurs de rapport d'aspect mesurées sont en accord avec les valeurs précédemment publiées dans la littérature pour des matériaux Lin/PP injectés (Arbelaiz et al., 2005b). Les valeurs de diamètre indiquent que les

renforts sont en partie sous la forme de faisceaux pour R1 et R3, alors que les mesures indiquent un diamètre de 20,5 μm pour R6, ce qui est proche du diamètre moyen des fibres unitaire. Ceci montre que la plupart des renforts sont sous forme de fibres unitaire, avec quelques paquets. Cela révèle une forte séparation des faisceaux de fibres. Le diamètre moyen est plus petit et le rapport d'aspect est supérieur à R6 ($P < 0,01$), indiquant une meilleure division des faisceaux de fibres dans le matériau composite. Il existe donc une influence du degré de rouissage sur le fractionnement des faisceaux de fibres et, par conséquent, le rapport d'aspect est augmenté.

2.3.1.2. Observations de la microstructure des éprouvettes par MEB et Microtomographie à rayons-X

Des observations au MEB et des analyses par micro tomographie à rayons-X ont été réalisées pour étudier la microstructure. Les observations MEB permettent d'obtenir des images à haute résolution d'une section. La micro tomographie donne des images avec une résolution moindre, mais permet d'étudier les matériaux dans l'épaisseur de l'éprouvette sans les endommager par la préparation des échantillons.

Les observations MEB ont été effectuées sur deux zones des éprouvettes injectées. La Figure 54 a) présente les deux zones étudiées : la zone centrale de l'éprouvette, appelée cœur et la zone de surface de l'éprouvette appelée peau.

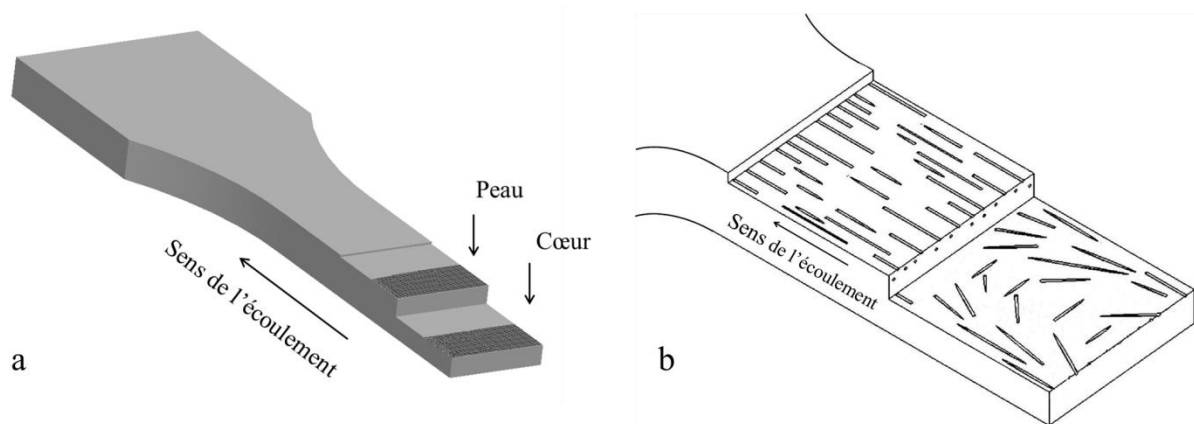


Figure 54 (a) Schéma de principe de l'éprouvette de traction mettant en évidence les zones d'observation au MEB de la zone peau et cœur. (b) Schéma de l'orientation des fibres dans la peau et le cœur dans une éprouvette de traction, adapté de Bourmaud et al. (2013a).

Des échantillons provenant d'éprouvettes injectées à partir des compounds réalisés avec les fibres R1, R3 et R6 ont été observés. La Figure 55 présente les images obtenues en reconstituant la largeur complète de l'éprouvette par groupement d'une série de 10 photographies avec un grossissement $\times 50$. Le but est d'obtenir une image finale dont la résolution est suffisante afin d'observer l'agencement des fibres dans l'éprouvette.

Un effet cœur/peau est visible pour les 3 échantillons. Il est relativement marqué pour R1 et R3 et moins visible pour R6. La Figure 54 b) est un schéma représentant l'orientation typique des renforts dans les zones cœur et peau d'une éprouvette d'un matériau injecté. Dans la zone peau, les fibres sont quasiment alignées parallèlement par rapport au sens d'injection, tandis que dans la zone cœur, les fibres sont parallèles à l'écoulement près des bords de l'éprouvette, puis s'orientent progressivement des bords vers le centre, où les fibres sont perpendiculaires à l'écoulement et dans le plan de l'éprouvette.

Ces images permettent d'évaluer la division des faisceaux de fibres de manière qualitative. L'échantillon R1 contient une importante quantité de faisceaux de fibres de diamètres élevés, aussi bien dans le cœur que dans la peau. Tandis que l'échantillon R6 contient des faisceaux de tailles moins élevées et une quantité importante de fibres unitaires. L'échantillon R3 est un intermédiaire entre R1 et R6. Ces observations sont en accord avec l'évolution des dimensions des renforts. Ce résultat met en valeur la plus grande capacité des fibres rouies à se diviser pendant le processus de mise en œuvre des matériaux composites. Les observations MEB haute résolution permettent d'évaluer l'orientation des fibres dans l'éprouvette et la division des faisceaux de fibres induites par le rouissage. Ces observations sont effectuées dans un plan et les informations concernant le volume de l'échantillon sont limitées.

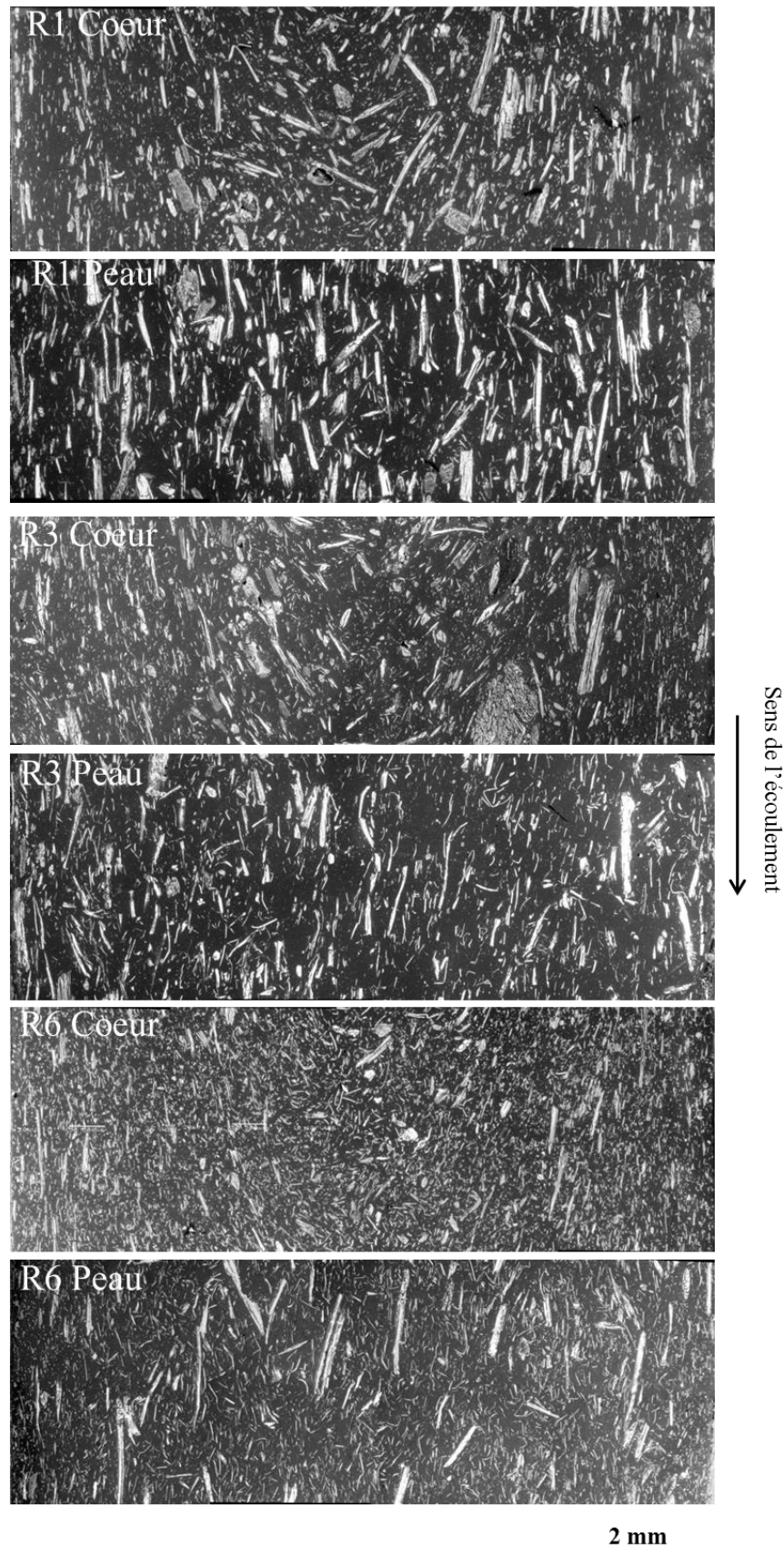


Figure 55 : Vue en coupe des éprouvettes injectée mettant en évidence les zones peau et cœur. Les observations sont effectuées comme indiqué sur la figure 6.

La micro tomographie à rayons-X a été utilisée pour étudier l'épaisseur complète d'une éprouvette injectée. Ces analyses ont été effectuées sur la partie centrale d'éprouvettes type haltère renforcées avec les fibres R1, R3 et R6. Les dimensions du volume étudié sont $4 \times 10 \times 20 \text{ mm}^3$. Des vues en coupe ont été extraites des données de tomographie afin de pouvoir observer des zones d'intérêts dans les éprouvettes injectées. Les Figure 56, Figure 57 et Figure 58 montrent une comparaison entre les zones cœur et les zones peau pour respectivement R1, R3 et R6. Comme montré précédemment grâce aux observations par MEB, les trois échantillons présentent la microstructure typique des matériaux injectés.

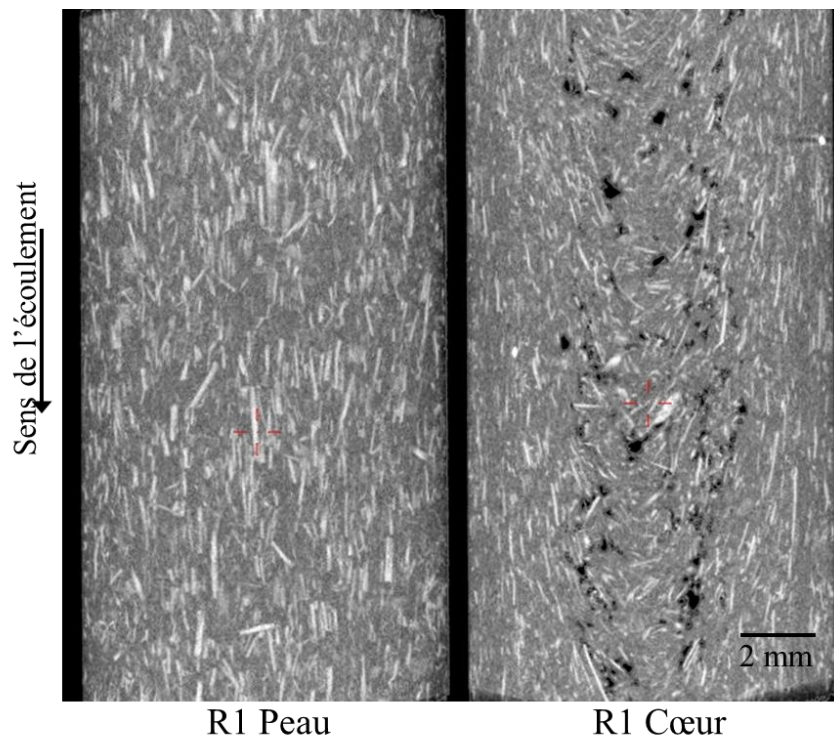


Figure 56 Vue de la zone peau et de la zone cœur d'une éprouvette R1, extraites des analyses par tomographie.

Un effet cœur/peau est visible pour les trois échantillons. L'échantillon R6 contient moins de faisceaux par rapport à R1 et R3, même si la résolution ne permet pas d'observer les fibres unitaires. Ceci met en évidence la capacité de division des faisceaux de fibres les plus rouies à se diviser pendant l'extrusion et le moulage par injection. Cette observation est en accord avec les mesures de diamètre réalisées après extraction des faisceaux.

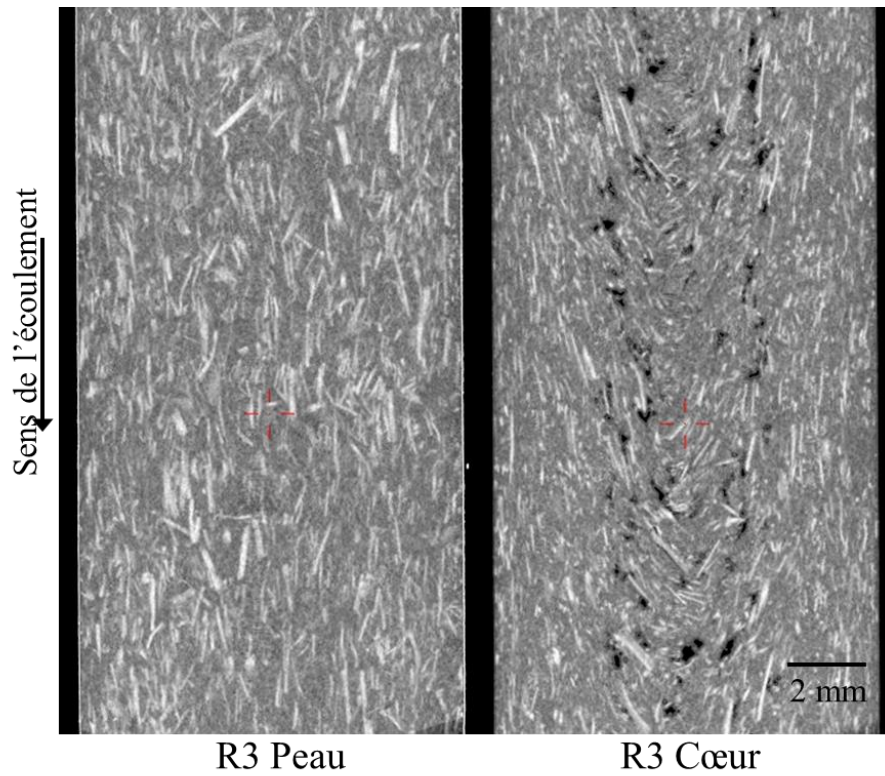


Figure 57 Vue de la zone peau et de la zone cœur d'une éprouvette R3, extraites des analyses par tomographie.

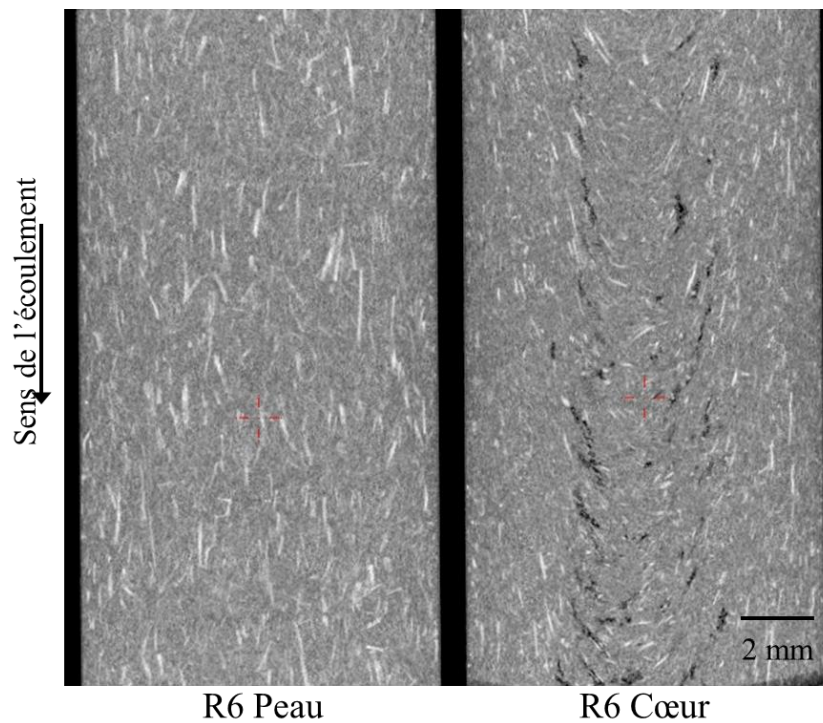


Figure 58 Vue de la zone peau et de la zone cœur d'une éprouvette R6, extraites des analyses par tomographie.

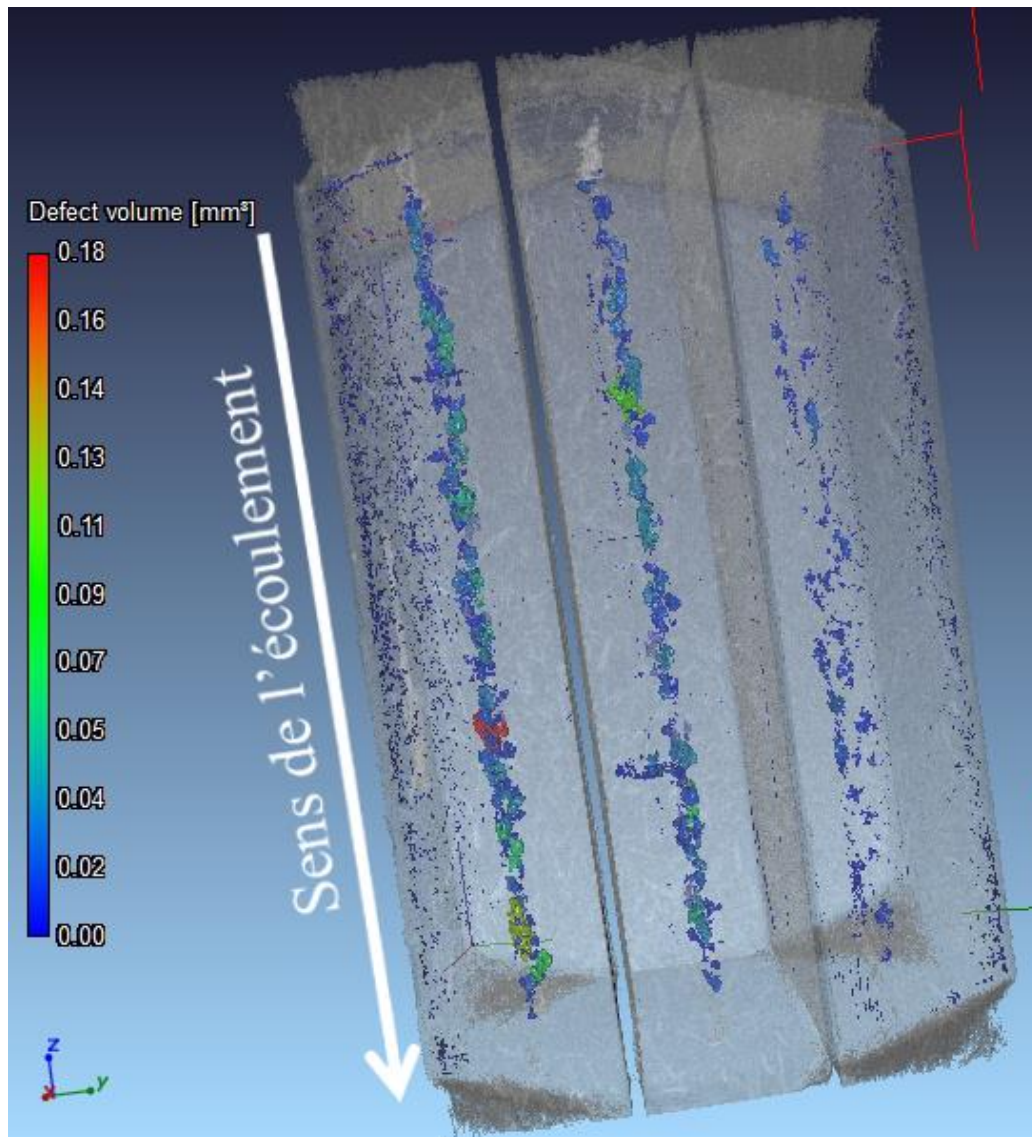


Figure 59 Vue en 3 dimensions des 3 échantillons PP/Lin extraite des analyses par microtomographie à Rayons-X. Les vides présents dans la matière sont mis en évidence. De la gauche vers la droite : R1, R3 et R6. Les pores les plus petits sont en bleu, les pores les plus grands sont en rouge (0,02 to 0,18 mm³).

La Figure 59 montre une vue en trois dimensions des éprouvettes injectées pour R1, R3 et R6. La microtomographie a permis de mettre en évidence la présence d'une certaine porosité en analysant les échantillons dans leurs épaisseurs. Les 3 échantillons contiennent un faible volume de vide, respectivement 0,3 %, 0,2 et 0,07 % du volume analysé pour R1, R3 et R6. Ces vides sont majoritairement localisés dans la zone de cœur de l'éprouvette, dans un plan parallèle au plan de l'éprouvette et parallèle à la direction d'injection. Cette technique donne des données de résolution plus faibles que les données MEB mais permet de faire une analyse de la totalité de l'épaisseur de l'échantillon.

2.4. Propriétés en traction des matériaux composites PP /Lin injectés

Des essais mécaniques de traction ont été réalisés sur des éprouvettes injectées afin d'étudier les différences de comportement des matériaux renforcés par les différents lots de fibres. La Figure 60 présente les courbes contrainte/déformation établies à partir des essais de traction des éprouvettes. La matrice polypropylène présente un comportement viscoélastique ductile. Le comportement mécanique des composites est linéaire en début de chargement, puis non linéaire à partir d'une certaine déformation. La limite de linéarité est indiquée par une flèche sur la figure. Cette limite correspond au premier endommagement. Etant donné l'orientation particulière des renforts (effet cœur/peau) et leur anisotropie, les zones où les fibres sont orientées perpendiculairement à la direction de traction sont endommagées en premier. Dans ce type de matériaux, les principaux mécanismes d'endommagement sont liés à une initiation de fissures dans la matrice au niveau des extrémités des renforts, et de la rupture de l'interface entre extrémités de fibres et matrice. La rupture est entraînée par une propagation de fissures dans un plan perpendiculaire à la direction de traction (Bourmaud et al., 2013a).

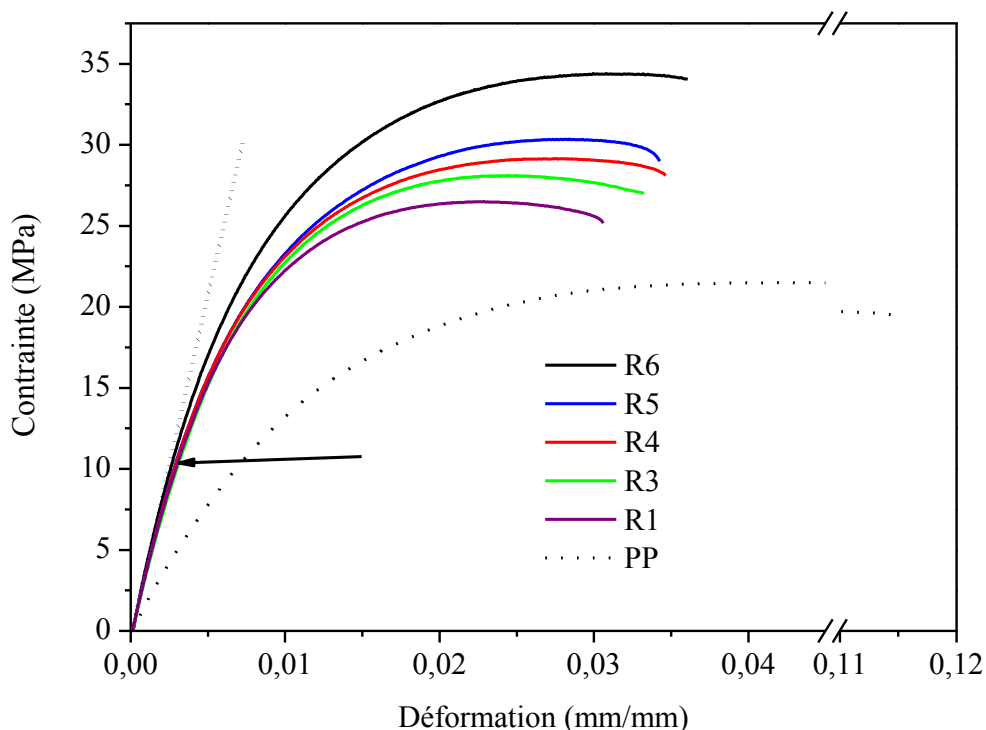


Figure 60 Courbe de comportement en traction pour les éprouvettes injectées lin/PP.

Les faciès de rupture des éprouvettes de traction ont été observés au MEB. Deux types de faciès coexistent sur la surface de rupture des éprouvettes indépendamment de la zone d'étude (Figure 61). A l'échelle macroscopique, lors d'un essai de traction, le matériau est déformé plastiquement, cependant, on observe un faciès de rupture dit "ductile" et un faciès de rupture dit "fragile" (Figure 62 et Figure 63). Ces faciès sont répartis aléatoirement sur la surface de rupture. Des déchaussements de fibres peuvent être observés dans les deux types de zones.

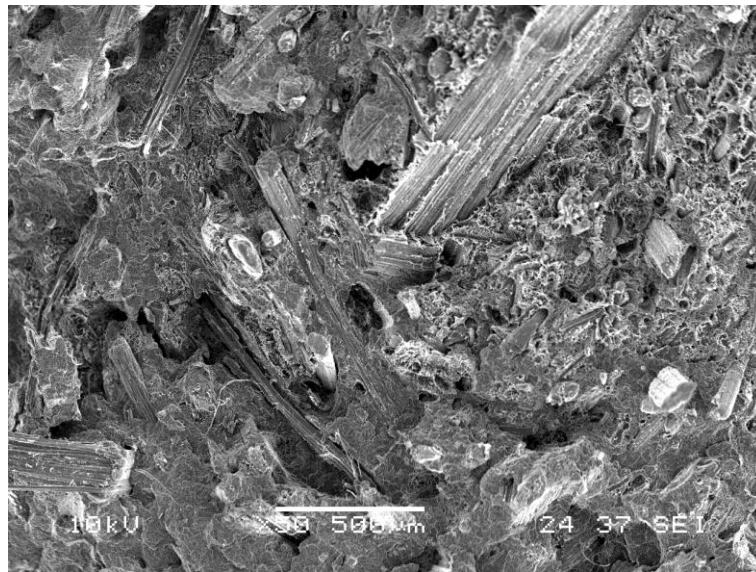


Figure 61 Faciès de rupture de l'éprouvette R1. Coexistence de deux zones, à gauche plus fragile et à droite plus ductile.

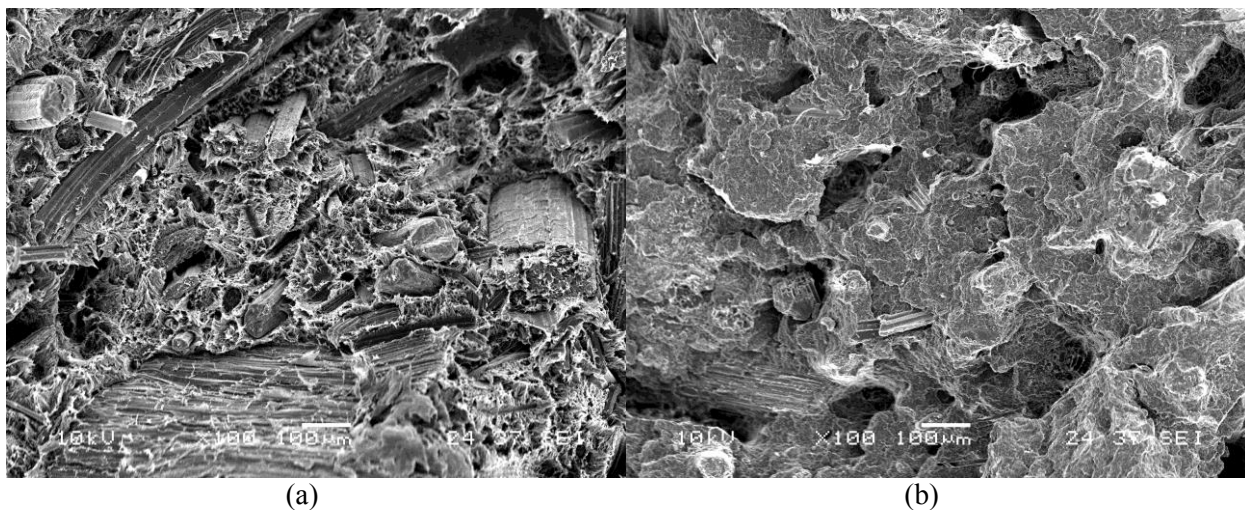


Figure 62 Faciès de rupture de l'éprouvette R1. (a) zone "ductile", (b) zone "fragile".

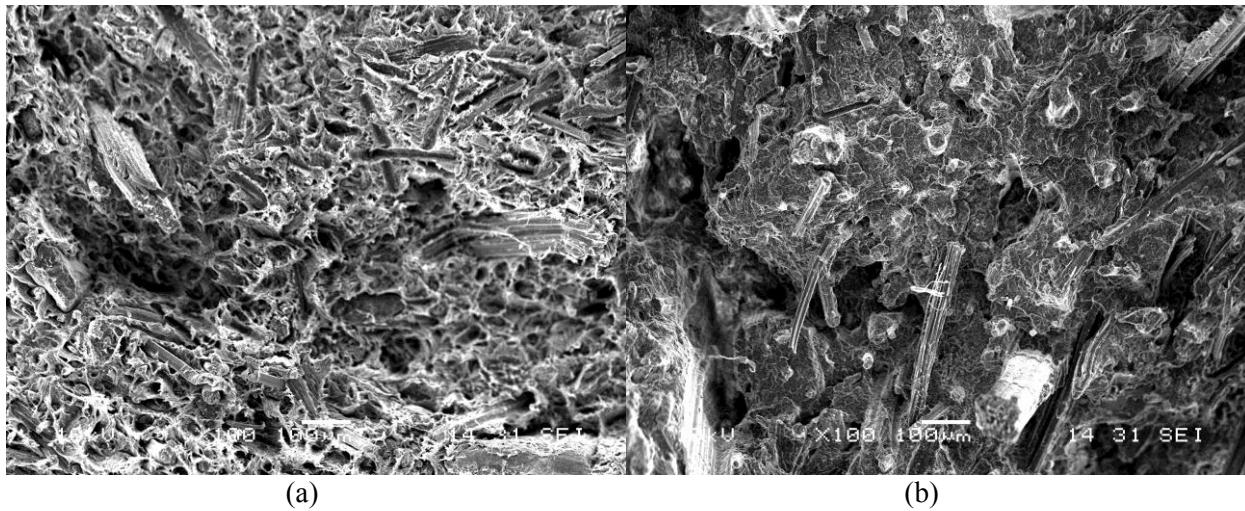


Figure 63 Faciès de rupture de l'éprouvette R6. (a) zone "ductile", (b) zone "fragile".

Les Figure 64 et Figure 65 montrent l'évolution des propriétés mécaniques des composites injectés en fonction du degré de rouissage des fibres. Les propriétés de rigidité et de résistance obtenues pour les matériaux lin/PP sont supérieures à la matrice vierge quel que soit le niveau de rouissage des fibres, ce qui met en évidence la capacité de renforcement des fibres de lin. La déformation à rupture diminue par rapport au PP vierge.

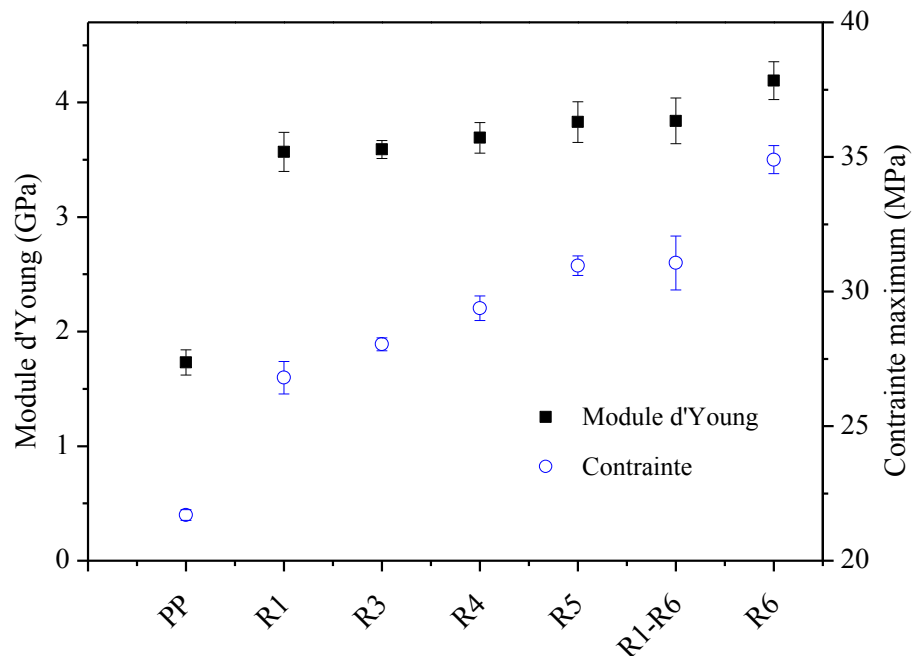


Figure 64 Propriétés mécaniques en traction des matériaux injectés renforcés par les fibres de R1 à R6. Module d'Young et contrainte maximum.

Les propriétés mécaniques augmentent avec le degré de rouissage (Figure 64). Cette évolution des propriétés suit la tendance observée pour les propriétés mécaniques des fibres unitaires.

Les valeurs de module d'Young et de contrainte à rupture augmentent avec le degré de rouissage des fibres. La déformation à rupture n'est pas influencée par le degré de rouissage. On note cependant une faible évolution du module d'Young. Par ailleurs, au vu des écarts-types, les dispersions des valeurs de contrainte maximale et de module d'Young sont très faibles par rapport à celles observées pour la contrainte à rupture et le module d'Young des fibres unitaires. Cet aspect peut être expliqué par l'effet d'homogénéisation, lors de la mise en œuvre des composites. L'échantillon R1-R6 correspond à un matériau renforcé par un mélange des deux lots de fibres R1 et R6 en proportions égales. Le mélange des deux lots de fibres permet d'obtenir des propriétés mécaniques équivalentes au matériau renforcé par des fibres R5. Le mélange de lots serait donc possible afin de valoriser des fibres de lin peu rouies.

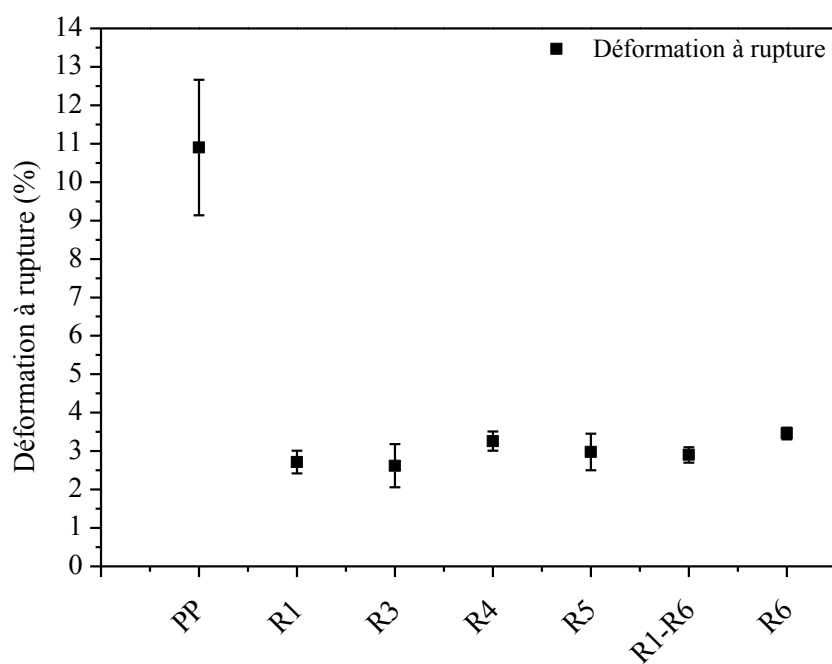


Figure 65 Propriétés mécaniques en traction des matériaux injectés renforcés par les fibres de R1 à R6. Déformation à rupture.

Dans le cas de cette étude, l'amélioration des propriétés mécaniques des composites injectés peut provenir de plusieurs origines. Tout d'abord, l'augmentation des propriétés mécaniques intrinsèques des fibres unitaires avec le degré de rouissage permet d'améliorer les propriétés mécaniques des composites. Les propriétés de surface, la morphologie et

l'orientation des renforts jouent également un rôle déterminant. Les observations par microscopie électronique à balayage indiquent que la surface des faisceaux de fibres les plus rouies est plus propre. De plus, les extractions à l'eau bouillante et EDTA corroborent les observations MEB et montrent que les fibres les plus rouies contiennent moins de résidus en surface. Une partie des tissus corticaux a été retirée grâce au rouissage et au teillage. La surface des fibres individuelles est donc plus facilement accessible par la matrice, favorisant la cohésion fibre/matrice. En outre, le rouissage permet de retirer les parties ligneuses de la tige, les anas. Ces particules sont retrouvées dans les composites renforcés par les fibres les moins rouies et peuvent être à l'origine de zones de moindre performance dans les matériaux. Un degré de rouissage élevé permet un fractionnement aisé des faisceaux de fibres durant l'étape de compoundage et le moulage par injection. L'état de division des renforts contenus dans les matériaux composites est plus important pour un degré de rouissage élevé, les diamètres des renforts sont plus faibles et leur rapport d'aspect plus élevé que pour les fibres possédant un degré de rouissage plus faible. De ce fait la surface interfaciale entre fibre et matrice est plus importante et permet un meilleur transfert de charge entre les deux constituants. L'analyse par microtomographie à Rayons-X a montré que les échantillons contiennent une faible quantité de pores. Ces défauts sont majoritairement localisés dans le cœur des éprouvettes de traction, où l'orientation des renforts est perpendiculaire à la direction de sollicitation mécanique lors de l'essai de traction. Cette région est la première à être endommagée lors d'une sollicitation de traction. En effet les fibres et faisceaux de fibres sont sollicités en traction transverse. La présence de porosité pourrait accentuer l'endommagement.

2.5. Comparaison de la rigidité mesurée avec celle obtenue par un modèle micromécanique

Afin d'examiner le transfert des propriétés des fibres aux matériaux composites injectés, il est intéressant d'évaluer des modèles micromécaniques. En connaissant les propriétés élastiques des fibres, de la matrice et la fraction volumique de fibre, il est possible d'estimer la rigidité d'un pli renforcé par des fibres courtes. On considère comme hypothèse simplificatrice, que les fibres sont aléatoirement dispersées dans le plan de stratification. L'approche est basée sur l'analogie entre un composite dont les renforts sont aléatoirement distribués dans le plan et un laminé quasi isotrope du type $[0/90/\pm 45]_s$.

Les données d'entrée du modèle sont présentées dans le Tableau 12 (propriétés des fibres unitaires) et dans le Tableau 14 (rapport d'aspect des renforts).

Les modèles micromécaniques doivent prendre en compte : la forte anisotropie des propriétés des fibres, l'orientation des fibres, le rapport d'aspect des fibres, la fraction volumique de fibre.

Il convient de souligner que peu d'études ont effectué une telle approche pour les composites renforcés par des fibres végétales en utilisant les propriétés réelles mesurées sur les fibres. Il convient également de noter que l'une des sources d'incertitude est la valeur du module transverse des fibres unitaires. Bourmaud et Baley (2009) ont obtenu, par nanoindentation, un module transversal de $4,98 \pm 1,52$ GPa et $3,85 \pm 0,87$ GPa respectivement pour les fibres de chanvre et de sisal. Baley et al. (2006) ont estimé le module transversal de la fibre de lin, soit environ 8 GPa, en utilisant des expressions micromécaniques suite à des essais sur les UD. Cette dernière valeur (8 GPa) sera utilisée dans les modèles présentés ici. Le module longitudinal E_L et le module transversal E_T pour un pli renforcé par des fibres unidirectionnelles courtes sont donnés par les équations proposées par Halpin et Tsai (Halpin et Kardos, 1976), présentée ci-dessous:

$$\frac{M}{M_m} = \frac{1 + \xi \cdot \eta \cdot V_f}{1 - \eta \cdot V_f}$$

$$\eta = \frac{\frac{M_f}{M_m} - 1}{\frac{M_f}{M_m} + 1}$$

où $M = E_L$ ou E_T , $M_f = E_{fL}$ ou E_{fT} avec E correspondant au module d'élasticité et les indices m , f , L et T correspondant à matrice, fibre, longitudinal et transversal. V_f est la fraction volumique de fibres et ξ le facteur de forme. Pour le module d'élasticité longitudinal, $\xi = 2 L / d$ où L / d est le rapport de forme des fibres. Pour le module transversal E_T , des résultats satisfaisants ont été obtenus avec $\xi = 2$ (R. F. Gibson, 2011), pour un composite classique.

Connaissant les rigidités longitudinale et transversale d'un pli renforcé par des fibres unidirectionnelles, le module d'Young d'un pli renforcé par des fibres dispersées de façon

aléatoire (hypothèse considérée ici dans le but de simplifier le modèle) est alors donné par l'expression de Tsai et Pagano (R. F. Gibson, 2011) :

$$E_{mat} = \frac{3}{8}E_L + \frac{5}{8}E_T$$

où E_L est le module d'élasticité longitudinal et E_T est le module transversal du pli unidirectionnel, déterminé à partir des expressions (2) et (3). Les hypothèses utilisées dans ces modèles sont une distribution aléatoire des fibres dans le plan, l'absence d'effets de distribution cœur/peau, une répartition homogène des fibres individuelles (pas de faisceaux), ainsi qu'une absence de porosité. Les fractions volumiques de fibres, calculées grâce à la mesure de la masse volumique des éprouvettes, sont utilisées pour les calculs. Le Tableau 15 présente les valeurs prédites par le modèle en comparaison avec les résultats expérimentaux.

Echantillon	E fibres (GPa)	L/D	E composite (GPa) Essais	E composite (GPa) Modèle	$V_f(\%)$
PP/MA-PP	/	/	$1,5 \pm 0,1$	1,5	/
R1	$38,6 \pm 17,3$	$10,7 \pm 8,1$	$3,6 \pm 0,18$	3,3	$18,9 \pm 0,1$
R3	$48,6 \pm 11,8$	$11,0 \pm 6,9$	$3,6 \pm 0,08$	3,6	$19,5 \pm 1,6$
R6	$55,6 \pm 11,8$	$13,5 \pm 7,0$	$4,2 \pm 0,16$	4,0	$20,3 \pm 0,1$

Tableau 15 Rigidité en traction mesurée et prédite par le modèle pour les composites injectés.

Compte tenu des diverses hypothèses simplificatrices, nos résultats indiquent une corrélation acceptable entre les tests et les prévisions. Les valeurs de ξ choisies ici, qui sont celles généralement utilisées dans la littérature pour les composites renforcés par des fibres synthétiques, permettent de fournir une bonne prédiction des propriétés mécaniques des composites renforcés par des fibres de lin. Les rapports d'aspect des fibres, relativement faibles, limitent le transfert des propriétés des fibres vers la matrice. Une plus grande rigidité pourrait être obtenue avec un rapport d'aspect plus élevé.

2.6. Influence d'un traitement à l'eau des fibres sur les propriétés mécaniques de matériaux injectés Lin/PP

Les travaux de Bourmaud et al. (2010) ont montré l'intérêt d'un traitement à l'eau pour améliorer la division et les propriétés mécaniques de fibres de lin Electra. Nous proposons d'étudier l'influence de ce type de traitement sur les propriétés mécaniques de composites injectés renforcés par des fibres courtes.

2.6.1. Matériaux

Afin d'effectuer le traitement à l'eau, le protocole décrit dans les travaux de Bourmaud et al. (2010) est utilisé. Des fibres coupées provenant des lots R1, R4 et R6 sont plongées dans un bain d'eau distillée à 23°C, pendant 72h. Elles sont ensuite rincées par deux lavages à l'eau distillée, puis séchées à 23°C et 50 % d'humidité relative. Les fibres R1, R4 et R6 traitées à l'eau sont respectivement nommées R1Eau, R4Eau, R6Eau.

2.6.2. Analyse thermogravimétrique

De la même manière que pour l'étude du degré de rouissage des fibres, l'analyse thermogravimétrique a été utilisée afin d'évaluer l'effet du traitement à l'eau sur les pertes de masse lors de la thermo dégradation des fibres. Les analyses sont effectuées sur des fibres coupées. Les Figure 66, Figure 67 et Figure 68 présentent les courbes de perte de masse des fibres en fonction de la température pour les fibres R1, R4, R6, ainsi qu'après le traitement à l'eau.

Échantillon	1 ^{ere} perte (%)	T°C	2 ^e perte (%)	T°C	3 ^e perte (%)	T°C	Résidus
R1	6,5 ± 0,25	57 ± 3	55,2 ± 0,2	310 ± 0,4	35,3 ± 0,6	437 ± 4	3,0 ± 0,2
R1Eau	6,2 ± 0,1	55 ± 5	58,9 ± 0,4	334 ± 1,0	33,9 ± 0,4	452 ± 1	1,1 ± 0,3
R4	6 ± 0,2	60 ± 1	59,0 ± 0,1	322 ± 3,8	32,9 ± 0,1	420 ± 1	2,0 ± 0,1
R4Eau	6,1 ± 0,5	58 ± 3	61,6 ± 0,5	330 ± 0,5	31,0 ± 0,2	434 ± 1	1,3 ± 0,1
R6	6 ± 0,1	57 ± 2	62,6 ± 0,2	326 ± 0,7	29,8 ± 0,1	420 ± 3	1,6 ± 0,1
R6Eau	5,9 ± 0,7	60 ± 4	64,5 ± 0,8	325 ± 0,5	28,2 ± 0,5	420 ± 4	1,3 ± 0,2

Tableau 16 Résultats de l'analyse thermogravimétrique. Comparaison entre les fibres vierges et les fibres traitées à l'eau. Perte de masse et température de dégradation correspondante.

Le traitement à l'eau ne modifie pas la première perte de masse. Ce traitement ne modifie donc pas la capacité de stockage de l'eau pour une humidité relative de 50 %.

La seconde perte de masse augmente avec le traitement à l'eau, de 3,7 %, 2,6 % et 1,9 % respectivement pour R1, R4 et R6. La troisième perte de masse diminue de 1,4 %, 1,9 % et 1,6 % respectivement pour R1, R4 et R6. La quantité de résidus restant diminue également de 1,9 %, 0,7 % et 0,3 %. En comparant ces variations avec celles du Tableau 10, il est possible ici de faire une analogie entre l'effet d'un traitement à l'eau et l'effet du rouissage. Le traitement à l'eau utilisé ici permet la dégradation de certains polysaccharides. La différence dans la 2^e perte de masse est moins conséquente lorsqu'il s'agit de fibres plus rouies. Une partie des composés a déjà été éliminée pendant le rouissage, ce qui explique la moindre perte de masse.

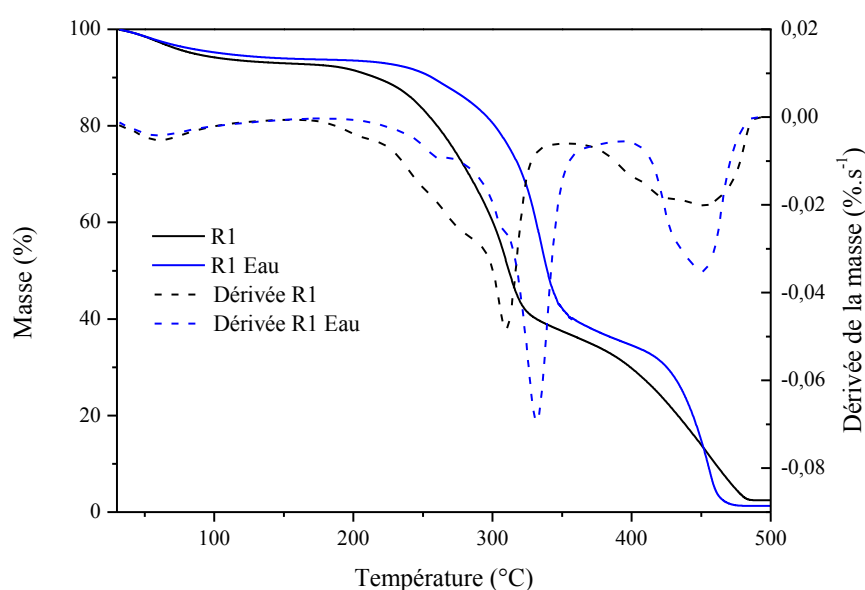


Figure 66 Analyse thermogravimétrique des échantillons R1 et R1Eau.

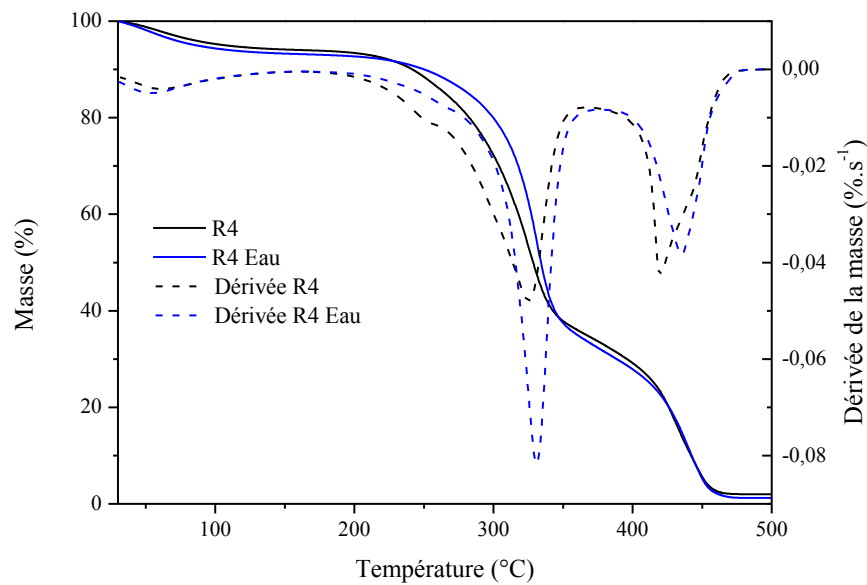


Figure 67 Analyse thermogravimétrique des échantillons R4 et R4Eau.

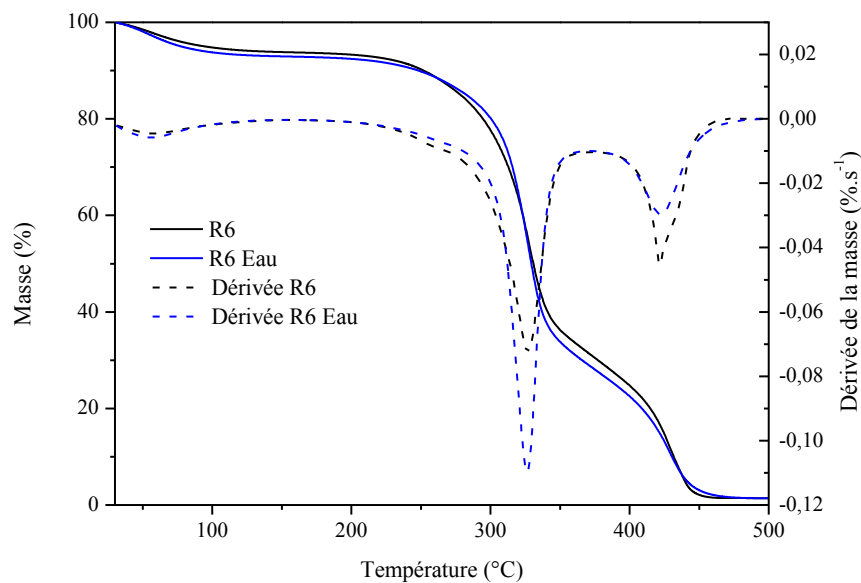


Figure 68 Analyse thermogravimétrique des échantillons R6 et R6Eau.

2.6.3. Propriétés mécaniques des composites injectés

L'utilisation d'un traitement à l'eau des fibres a permis de modifier les propriétés mécaniques des matériaux composites injectés (Figure 69 et Figure 70).

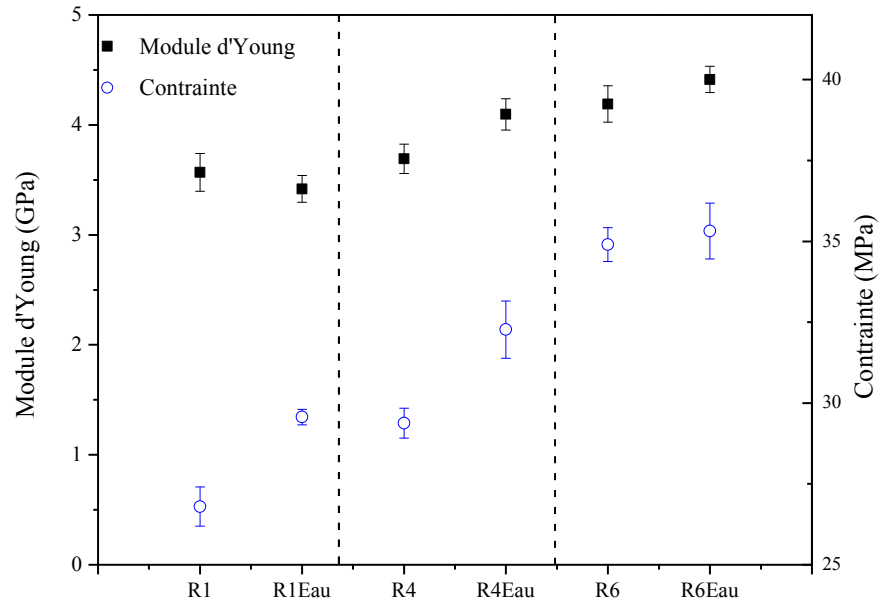


Figure 69 Propriétés mécaniques en traction des matériaux injectés renforcés par les fibres R1, R4 et R6 ainsi que ces mêmes lots traités à l'eau. Module d'Young et contrainte maximale.

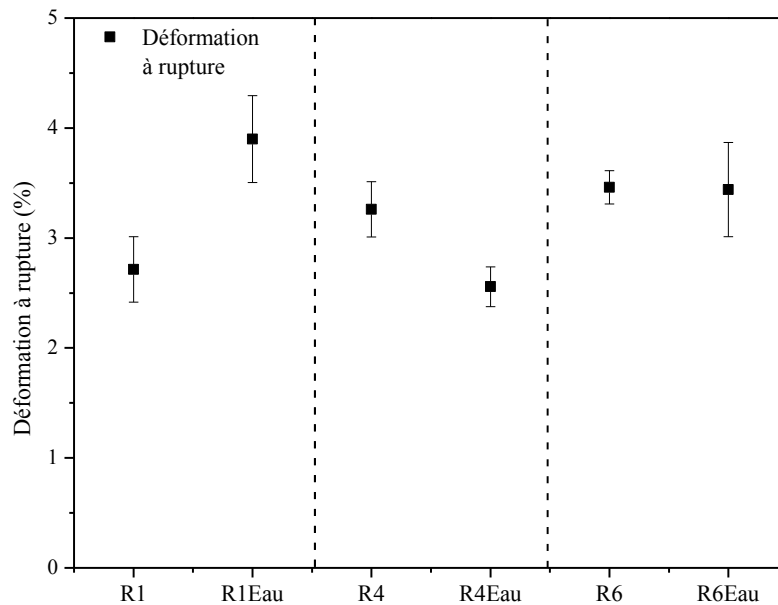


Figure 70 Propriétés mécaniques en traction des matériaux injectés renforcés par les fibres R1, R4 et R6 ainsi que ces mêmes lots traités à l'eau. Déformation à rupture.

Les travaux de (Bourmaud et al., 2010) ont montré une augmentation des propriétés mécaniques des fibres unitaires de lin après un traitement à l'eau à 23°C. Dans notre cas, l'amélioration des propriétés mécaniques des matériaux composites peut être attribuée à l'augmentation des propriétés mécaniques de fibres ainsi qu'à l'augmentation de l'état de division des faisceaux suite au traitement à l'eau effectué.

3. BILAN DU CHAPITRE III

Dans ce chapitre, l'influence du degré de rouissage sur les propriétés des fibres unitaires de lin et de composites à matrice polypropylène renforcés par des fibres courtes de lin a été étudiée.

Plusieurs méthodes ont été utilisées pour estimer le degré de rouissage et évaluer son influence sur les propriétés mécaniques des fibres. Le changement de couleur visible du jaune au gris a été mis en évidence et caractérisé par des mesures de spectrophotométrie. La dégradation des tissus corticaux et des lamelles mitoyennes a été observée par microscopie électronique à balayage et évaluée par extraction des composés de surface des faisceaux de fibres. Les mesures par ATG ont montré des différences de dégradation thermique des fibres et fournissent une information supplémentaire sur le degré de rouissage.

Les études de sorption d'eau ont révélé une absorption d'eau plus élevée pour les fibres faiblement rouies. L'étude de la sorption d'eau des matériaux composites pour des degrés de rouissage de fibres différents serait intéressante dans le futur.

Le module d'Young et la contrainte à rupture des fibres unitaires augmentent avec le rouissage. Néanmoins, cette augmentation des propriétés mécaniques est complexe et les mécanismes gouvernant la modification des propriétés mécaniques des fibres ne sont pas identifiés. Le rouissage pourrait donc entraîner une modification biochimique et structurale dans les parois. Mais cet aspect reste à étudier dans le futur.

Les propriétés mécaniques des composites injectés renforcés par des fibres courtes sont améliorées avec un degré de rouissage élevé. Les propriétés mécaniques intrinsèques des fibres, l'aspect de surface et le rapport d'aspect des fibres jouent un rôle prépondérant. Un degré de rouissage élevé permet une division élevée des faisceaux de fibres durant la phase de compoundage et ensuite lors de l'injection. Pour les composites, l'état de division des renforts est augmenté, le diamètre des faisceaux de fibres est plus faible et le rapport d'aspect est plus élevé. Les éprouvettes injectées présentent un aspect cœur/peau, cet effet cœur/peau n'est pas influencé par le degré de rouissage. La tomographie a permis de mettre en évidence une faible porosité dans les échantillons. Cette porosité diminue avec le degré de rouissage. Les défauts sont majoritairement localisés dans le cœur de l'échantillon.

L'utilisation d'un traitement à l'eau a permis d'augmenter les propriétés mécaniques des composites injectés.

Ce chapitre souligne l'importance du degré de rouissage des fibres de lin afin d'optimiser la qualité des renforts de matériaux composites. Pour la filature, l'industrie textile

cherche à obtenir des faisceaux de fibres fins et bien séparés, dans le but de réaliser des fils fins. Dans une certaine mesure, ces critères sont applicables pour choisir des fibres pour des composites renforcés par des fibres courtes. L'homogénéisation réalisée lors de la mise en œuvre des composites limite l'impact du rouissage sur les propriétés mécanique des composites. Il serait intéressant d'étudier l'influence du rouissage sur des composites à renfort unidirectionnel.

Les mécanismes qui induisent une augmentation des propriétés mécaniques des fibres doivent être étudiés de manière plus poussée. Dans cette étude le sur-rouissage des fibres, qui correspond à un stade avancé de biodégradation des parois végétales, n'est pas étudié et pourrait faire l'objet de travaux complémentaires.

Chapitre IV COMPARAISON DES PROPRIETES DE FIBRES DE LIN PROVENANT DE FILASSE ET D'ETOUPE

Lors de la production industrielle des fibres de lin, l'étape de décortication des pailles (le teillage) permet d'obtenir un produit principal nommé la filasse, appelée également fibres longues. Une série de coproduits est créée, dont les étoupes. La filasse est le produit le mieux valorisé grâce à la longueur, la finesse (division des faisceaux) et la propreté de ses fibres. Elle peut être directement utilisée pour la filature après l'étape de peignage. Les étoupes sont composées de fibres entremêlées et contiennent des résidus de bois (les anas). Elles doivent être nettoyées et cardées avant la réalisation d'un produit fini. Selon les cours du lin (mars 2014), les prix de vente de la filasse et des étoupes sont respectivement de 1,7 €/kg et 0,7 €/kg. Aujourd'hui, les étoupes sont considérées comme un coproduit indésirable mais cependant inévitable, car étant intrinsèque au processus actuellement utilisé pour le teillage des plantes.

Les débouchés de la filasse et des étoupes sont variés. Le débouché historique du textile reste majoritaire, cependant le lin peut être utilisé pour d'autres applications.

La filasse est principalement valorisée dans l'industrie textile pour la réalisation de fils et de tissus destinés à la confection. Pour la réalisation de préforme textiles à destination des composites, la présentation optimale des fibres de lin n'est pas définie. Les préformes unidirectionnelles ou tissées sont réalisées à partir de filasse teillée et peignée, sous la forme de fil issu de la filature textile, ou de mèches de lin peigné non retordu.

En fonction du niveau de propreté et de division des étoupes, celles-ci sont valorisées dans l'industrie textile pour la filature cardée, l'industrie papetière ou en tant qu'isolant thermique. Pour le renforcement de matériaux composites, les étoupes sont utilisées dans l'industrie automobile, sous forme de non-tissés aiguilletés, dans des pièces non structurales (panneau intérieur, carénage de véhicule).

Dans ce chapitre, les propriétés de la filasse et des étoupes sont comparées. La présentation, la morphologie, les propriétés mécaniques des fibres sont étudiées pour de la filasse et des étoupes provenant de la même parcelle. Le renforcement d'une matrice époxy par des mèches de lin unidirectionnelles issues des deux types de fibres est aussi analysé.

Le but est d'évaluer l'intérêt des étoupes pour la réalisation de matériaux composites unidirectionnels.

1. MATERIAUX UTILISES

1.1. Sélection des fibres

Pour la réalisation des travaux présentés dans ce chapitre, le lin utilisé provient d'une culture industrielle de la variété Alizée. Les plantes ont été cultivées en 2012, en France dans le département de la Somme (80) sur une parcelle de 10 hectares. Tout d'abord, les semis ont eu lieu le 23 mars à raison de 1900 graines par m². Ensuite, les plantes ont été arrachées le 17 juillet et laissées sur le champ pour le rouissage, puis récoltées le 8 août et ensuite stockée sous abri. La culture de cette parcelle a permis d'obtenir un rendement en paille (graines comprises) de 7 t/ha. Ce rendement est proche des valeurs données dans la littérature pour le lin, 7,5 t/ha (Bert, 2013), 6,9 t/ha (ADEME/FRD, 2011). Après récolte, les pailles ont été teillées par la société Van Robaeys Frères afin d'en extraire les fibres. La ligne utilisée est de marque Depoortere et est munie de deux batteurs. La vitesse de teillage des pailles était de 1863 kg.h⁻¹. La vitesse de rotation des batteurs était de 200 t.min⁻¹. La vitesse d'avance de la ligne est de 80 m.min⁻¹. Ces réglages sont couramment utilisés pour ce type de machine (Sultana, 1992b).

Une ligne de teillage est constituée de plusieurs unités successives, la Figure 71 présente un schéma simplifié. A l'entrée de la ligne de teillage, la première étape consiste au déroulage des balles de paille. Une nappe homogène de tiges est manuellement étalée sur le tapis de chargement, puis introduite dans la ligne (Figure 71.a). Les tiges de lin sont orientées perpendiculairement à la direction de la ligne. Tout au long du processus, l'orientation du lin reste perpendiculaire à la direction du flux de matière. Le convoyage de la matière est effectué grâce à un entraînement par courroies.

La deuxième étape du processus est le retrait des graines (Figure 71.b). Ensuite, une unité appelée diviseur réduit l'épaisseur de la nappe de tiges en augmentant la vitesse d'avance de la matière, puis les tiges sont saisies entre deux courroies pour alimenter le système de broyage.

Durant la troisième étape, la matière est convoyée dans l'unité de broyage (Figure 71.c). Les tiges passent entre une série de rouleaux cannelés. Ces rouleaux permettent de briser le bois du lin (xylème) présent au centre de la tige. Les particules de bois (les anas) tombent dans une trémie aspirante placée sous les broyeurs. Une partie des anas est retirée lors du broyage mais une fraction reste collée à la surface des faisceaux de fibres. A ce stade

du processus, la matière se présente sous la forme de tiges écrasées et de faisceaux de fibres contenant des anas.

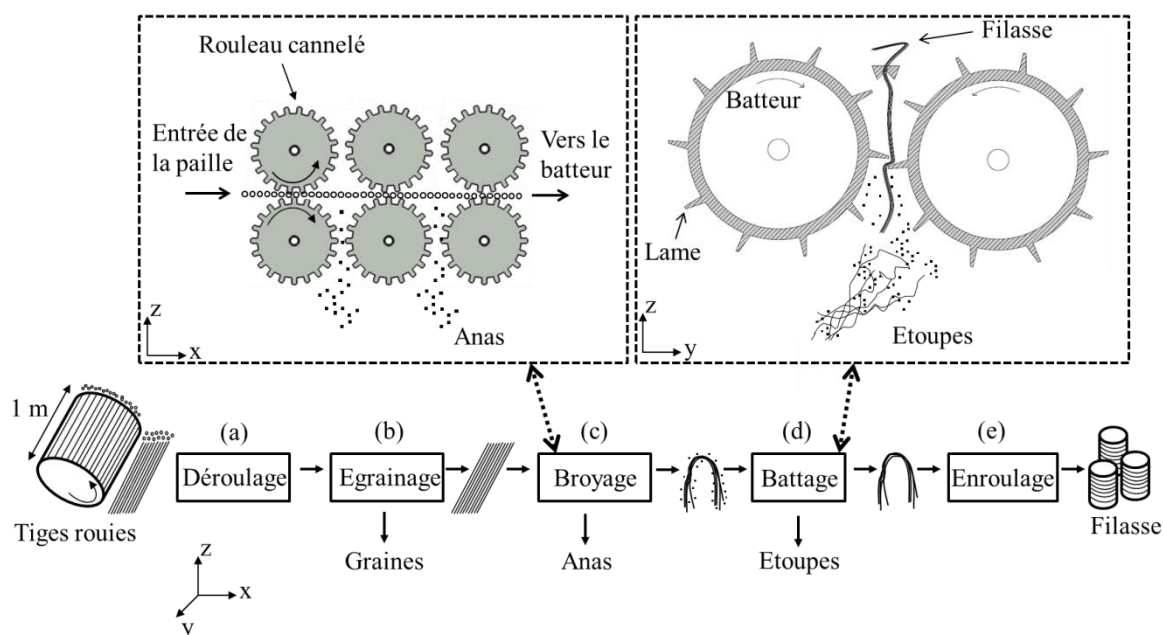


Figure 71 Schéma de la ligne de teillage utilisée dans cette étude. L'axe x représente la direction de la ligne.

Lors de la quatrième étape, les matières sont introduites dans l'unité de battage (Figure 71.d). Les tiges sont inclinées afin de permettre leur entrée. Les matières passent entre deux cylindres munies de lames, appelés batteurs. Ces cylindres effectuent un mouvement contraire rotatif qui permet de gratter le lin et retirer les anas. Durant cette étape, des faisceaux de fibres peuvent être arrachés, créant ainsi les étoupes. La ligne utilisée possède deux unités de battage, une unité pour la partie basse de la plante, et une autre unité pour la partie haute de la plante. Sous les batteurs, les étoupes tombent dans un circuit d'aspiration et sont collectées. Au bout de la ligne de teillage, la filasse est enroulée sous forme de balles (Figure 71.e).

Dans cette étude, le processus de teillage des pailles de lin a permis de produire 25% de fibres teillées, 11% d'étoupes, 5 % de graines et 59% d'anas et de résidus (pourcentage massique). Ces chiffres sont très proches de ceux donnés dans un guide technique récent édité par Arvalis (Bert, 2013). Les étoupes utilisées pour cette étude ont été récupérées en sortie des deux unités de battage et n'ont pas reçu d'autres traitements mécaniques.

Produit	Données de la littérature		Données de cette étude	
	Rendement (kg/ha)	Part de la masse des pailles (%)	Rendement (kg/ha)	Part de la masse des pailles (%)
Pailles rouies (non battues)	7500	100	7000	100
Fibres longues (filasse)	1650	22	1750	25
Etoupes	1125	15	770	11
Anas	3750	50	4130	59 (avec résidus)
Graines	375	5	350	5
Poussières et déchets divers	600	8	/	/

Tableau 17 Proportions moyennes de produit et coproduits obtenus après teillage. Chiffres issus de la littérature (Bert, 2013).

Pour la réalisation des matériaux composites, les fibres teillées sont utilisées telles quelles. Les étoupes ont été démêlées et alignées à la main afin de pouvoir réaliser des matériaux composites. Les travaux de Charlet et al. (2007) montrent une influence de la zone de prélèvement des fibres dans la tige sur les propriétés mécaniques en traction de fibres de lin ainsi que sur celles de composites à renfort UD. Pour cette étude, les mèches de fibres ont été systématiquement prélevées dans la partie centrale de la plante.

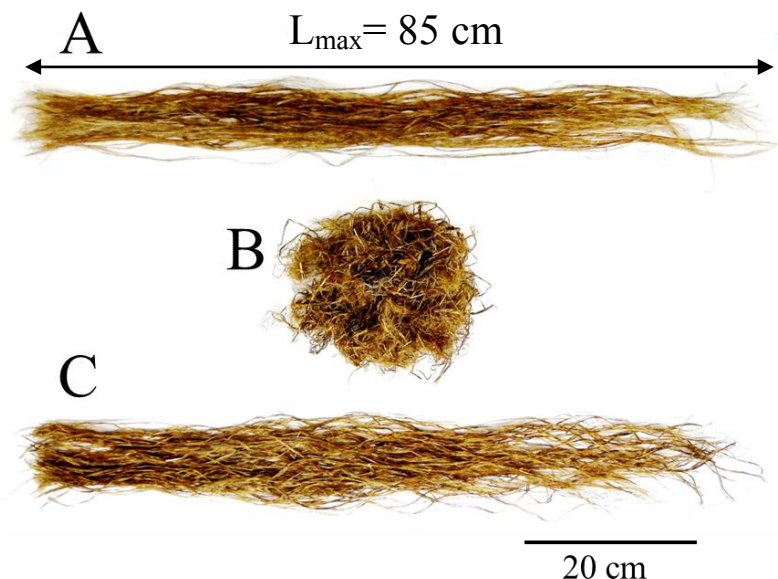


Figure 72 Photographie de la filasse (A), des étoupes brutes (B) et des étoupes démêlées et alignées (C).

La Figure 72 est une photographie de la filasse (A), des étoupes brutes (B) et des étoupes démêlées et alignées (C) utilisées dans cette étude. Les fibres teillées sont constituées de mèches relativement alignées avec un faible taux d'anas, tandis que les étoupes sont

entremêlées et contiennent des anas. En effet lors du battage, les anas et les étoupes arrachées du flux de matière tombent dans le même circuit (Figure 71.d). Ce n'est que lors du teillage et du nettoyage des étoupes que les anas peuvent être séparés des fibres.

1.2. Matrice utilisée

Pour la réalisation des composites unidirectionnels, un système résine/durcisseur epoxy est utilisé (Epolam 2020, Axson technologies). La résine et le durcisseur sont mélangés en proportion 100/34 avant la mise en œuvre des composites.

1.3. Réalisation des matériaux composites

Les matériaux sont réalisés suivant la procédure décrite dans le chapitre II section 2.2.

2. RESULTATS ET DISCUSSIONS

2.1. Etude de l'aspect et de la morphologie des deux produits

Dans cette partie, la longueur, la quantité d'anas et l'état de division des faisceaux fibreux sont évalués. La longueur des deux matières est tout d'abord examinée. La longueur de 100 mèches de filasse et d'étoupes a été mesurée à l'aide d'un réglet. Les étoupes sont démêlées et alignées afin de pouvoir être mesurées.

Matière	Longueur moyenne (cm)	Maximum (cm)	Minimum (cm)
Filasse	74 ± 9	85	56
Etoute	64 ± 19	85	12

Tableau 18 Longueur des mèches de filasse et d'étoupes.

Le Tableau 18 présente les résultats obtenus. Les mèches d'étoupes mesurent 64 ± 19 cm avec une longueur maximum de 85 cm et un minimum de 12 cm. Les mèches de filasse mesurent 74 ± 9 cm avec une longueur maximum de 85 cm et un minimum de 56 cm. La Figure 73 permet d'observer la dispersion des longueurs de mèche. Celle-ci est plus importante pour les étoupes. Au vu des résultats, les mèches d'étoupes sont en moyenne plus courtes que les mèches de filasse, mais plus longues que la taille généralement trouvée dans la

littérature, qui est de 30 cm (Van de Weyenberg et al., 2003) ou 50 cm (Batra, 1985). Cette comparaison avec la littérature est néanmoins à nuancer, car elle ne tient pas compte de la variété de lin, du degré de maturité des plantes, du degré de rouissage, du type de machine de teillage utilisée et de son réglage.

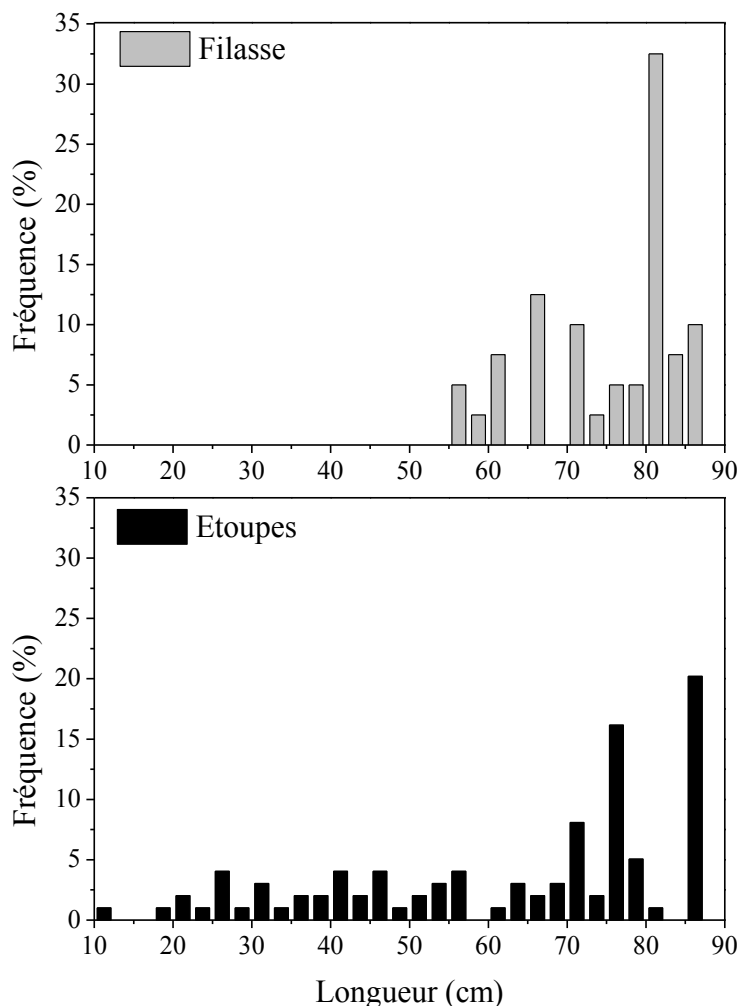


Figure 73 Répartition des longueurs de mèche pour la filasse et les étoupes.

La propreté de la matière est évaluée en quantifiant la masse d'anas contenue dans les deux produits. Un échantillon (50g) de matière est secoué afin de retirer les anas non adhérents, les anas restant sont retirés à l'aide d'une pince à épiler. Pour les étoupes, la mesure est effectuée sur la matière brute (Figure 72 B). La poussière contenue sur les fibres est très faible (de l'ordre de 0,5%) et est considérée comme négligeable. Les résultats montrent que les étoupes contiennent 20 % d'anas en masse, tandis que les fibres teillées contiennent moins de 1 % d'anas. Cette importante différence est liée au mélange des étoupes et des anas lors du battage des tiges au cours du teillage.

Après avoir retiré les anas, des extractions chimiques ont été réalisées suivant la procédure décrite dans le chapitre 2. Le but de l'essai est de quantifier les résidus de parenchyme cortical présents en surface des faisceaux. Les pertes de masse après extraction à l'eau et avec une solution d'EDTA sont décrites dans le Tableau 19. La perte de masse totale (B+C) est respectivement de 3,7 % pour la filasse et de 4,4 % pour les étoupes. La perte de masse totale est légèrement plus élevée pour les étoupes, ce qui signifie que ces dernières contiennent plus de résidus de parenchyme cortical en surface des faisceaux. Cette différence peut être expliquée par la différence de traitement mécanique subi par les deux matières. En effet, la filasse subit une extraction mécanique plus poussée que les étoupes.

Lot	A : H ₂ O	B : H ₂ O 100°C	C : EDTA 100°C	B+C
Filasse	9,5 ± 2,8	2,6 ± 0,4	1,1 ± 0,1	3,7 ± 0,3
Etoupe de lin	10,1 ± 0,8	3,1 ± 0,2	1,3 ± 0,2	4,4 ± 0,2

Tableau 19 Perte de masse après extraction chimique de faisceaux de fibres.

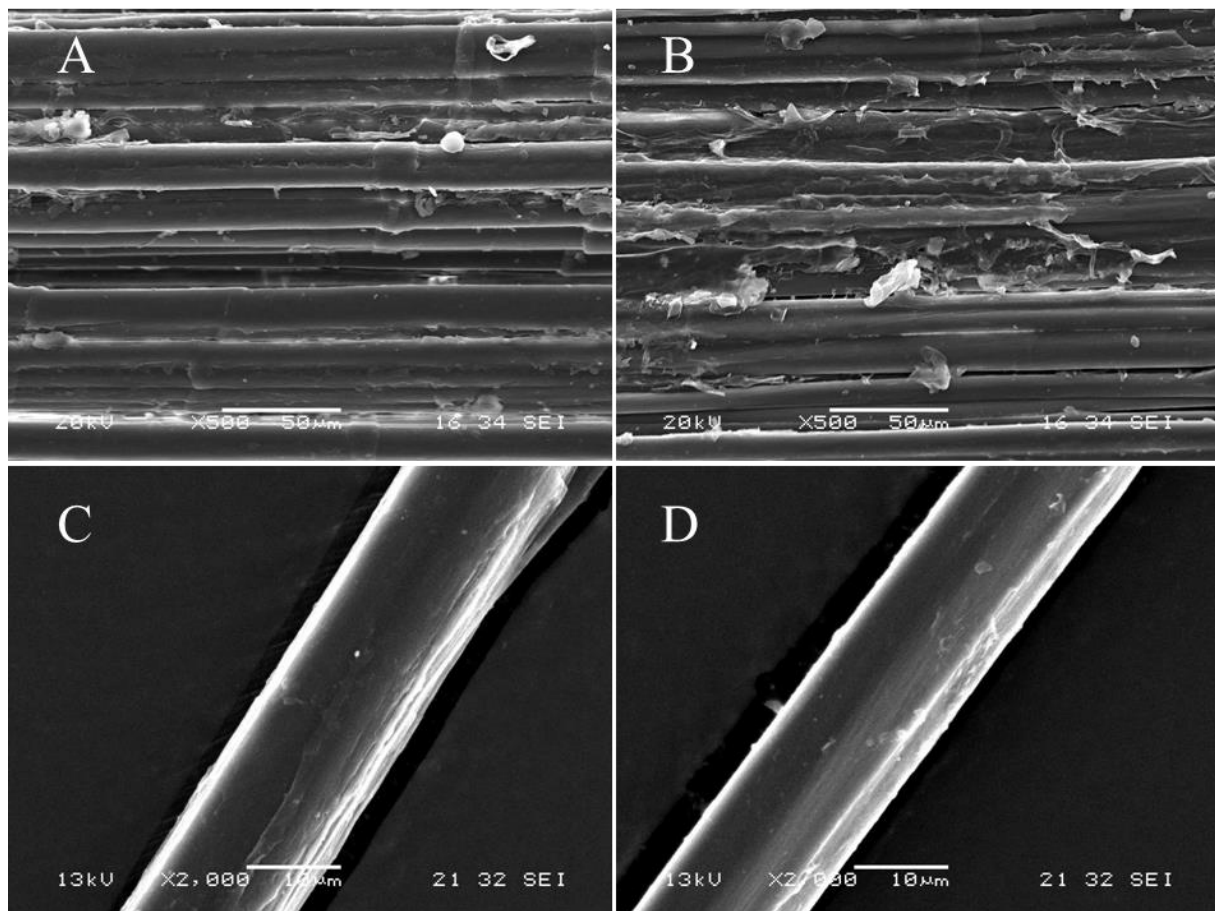


Figure 74 Observation MEB de faisceaux de filasse (A), de faisceaux d'étoupes (B), de fibres unitaires de filasse (C) et de fibres unitaires d'étoupes (D)

Des faisceaux de fibres et des fibres unitaires ont été observés par microscopie électronique à balayage afin d'apprécier leur état de surface. La Figure 74 regroupe les images des observations effectuées. La surface des faisceaux de fibres de filasse (Figure 74 A) contient moins de résidus que la surface des faisceaux d'étoupes (Figure 74 B). La surface des parois primaires des fibres unitaires est plus visible sur la filasse. En complément, des fibres unitaires ont été extraites à la main et observées. Les surfaces des fibres unitaires de filasse et celle des étoupes sont similaires (Figure 74 C et D).

Afin d'évaluer les tailles de section de faisceaux ainsi que leur état de division, des faisceaux ont été enrobés dans une résine de coulée, puis, l'aire des faisceaux a été mesurée sur des vues en coupe en utilisant le logiciel d'analyse d'image ImageJ à l'aide de la procédure décrite dans le chapitre II. 3.3. La Figure 75 montre une image MEB d'une section polie d'un échantillon de faisceaux de fibres (Figure 75a) ainsi que l'image en noir et blanc correspondante (Figure 75b). Les objets de couleur noire représentent la surface des fibres. A partir des images en noir et blanc, l'aire des sections de chaque objet présent sur l'image est mesurée. L'aire totale des sections analysées est respectivement 2,36 mm² et 2,58 mm² pour les étoupes et pour la filasse, ce qui représente respectivement environ 15400 et 16600 fibres unitaires en considérant un diamètre moyen de fibres unitaires de 14 µm. Le choix du diamètre moyen est discutable, car les valeurs de diamètres des fibres unitaires sont dispersées. Cependant utiliser le diamètre moyen permet d'estimer rapidement le nombre de fibres unitaires étudiées sans effectuer de comptage manuel.

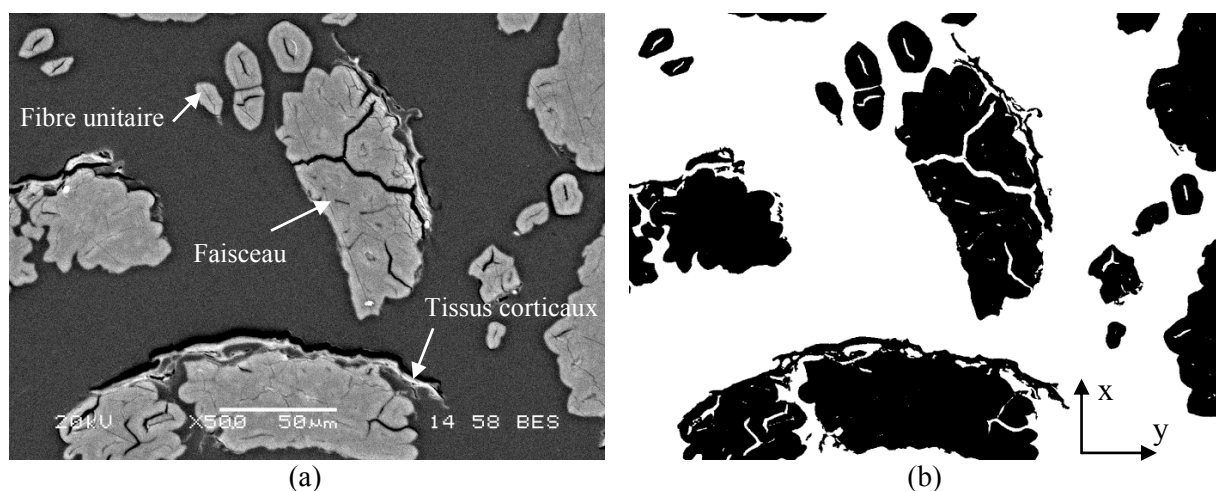


Figure 75 Vue en coupe de faisceaux de fibres de lin.
a) Image MEB brute. b) Image binaire après un seuillage noir et blanc.

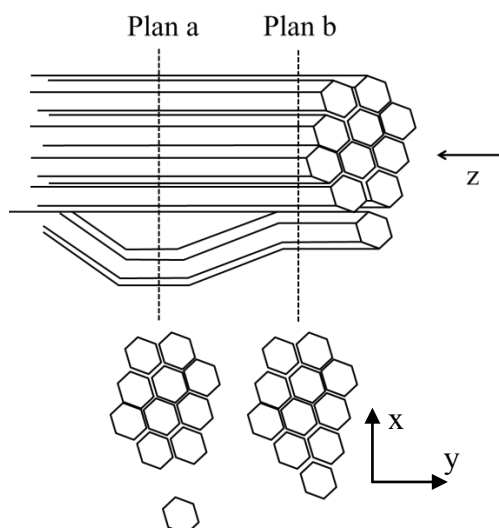


Figure 76 Représentation schématique d'un faisceau de fibres. Observation de la section transverse du même faisceau selon deux plans d'observations.

Le Tableau 20 donne les statistiques descriptives de l'analyse. L'aire moyenne de la section des objets est $1207 \mu\text{m}^2$ pour les étoupes et $967 \mu\text{m}^2$ pour la filasse. La dispersion des tailles d'objet est très large. La taille maximale est de $28\,000 \mu\text{m}^2$ pour les étoupes et $16\,000 \mu\text{m}^2$ pour la filasse. Cette large dispersion peut être expliquée par la présence d'objets de grande taille par rapport à la moyenne. Des groupements de 2 ou 3 faisceaux de fibres maintenues par des résidus de parenchyme corticaux sont visibles (flèche sur la Figure 75.a). Certains de ces groupes de faisceaux sont joints par des résidus de xylème (anas). Ces groupes de faisceaux forment alors des objets de taille importante ($>10000 \mu\text{m}^2$), cependant ils sont considérés comme des entités individuelles par l'analyse d'image. Le nombre de ces objets de taille importante est faible, respectivement 0,5 % pour la filasse et 1,5 % pour les étoupes.

Echantillons	Nombre d'objets étudiés	Aire moyenne des objets (μm^2) (mini-maxi)	Nombre moyen de fibres par faisceaux
Filasse	2641	967 (20-15889)	9 (1-49)
Etoupe	2439	1207 (20-27793)	8 (1-50)

Tableau 20 Résultats des analyses de coupe transversales de faisceaux de fibres de lin issus de filasse et d'étoupes. Les valeurs entre parenthèses sont le minimum et le maximum.

La Figure 77 montre la distribution des sections de faisceaux pour les deux types de fibres. Dans ce graphique, la fréquence cumulée est tracée en fonction de l'aire des sections de faisceaux. Pour faciliter la lecture, l'échelle de l'axe des ordonnées est non linéaire. Cette échelle peut être représentée par l'inverse d'une courbe gaussienne cumulée. Les courbes cumulatives montrent une évolution similaire de la distribution pour les deux types de fibres

jusqu'à $4000\mu\text{m}^2$. Ensuite, une différence est observée pour les plus objets plus large, ce qui rejoint les conclusions effectuées à partir des statistiques descriptives.

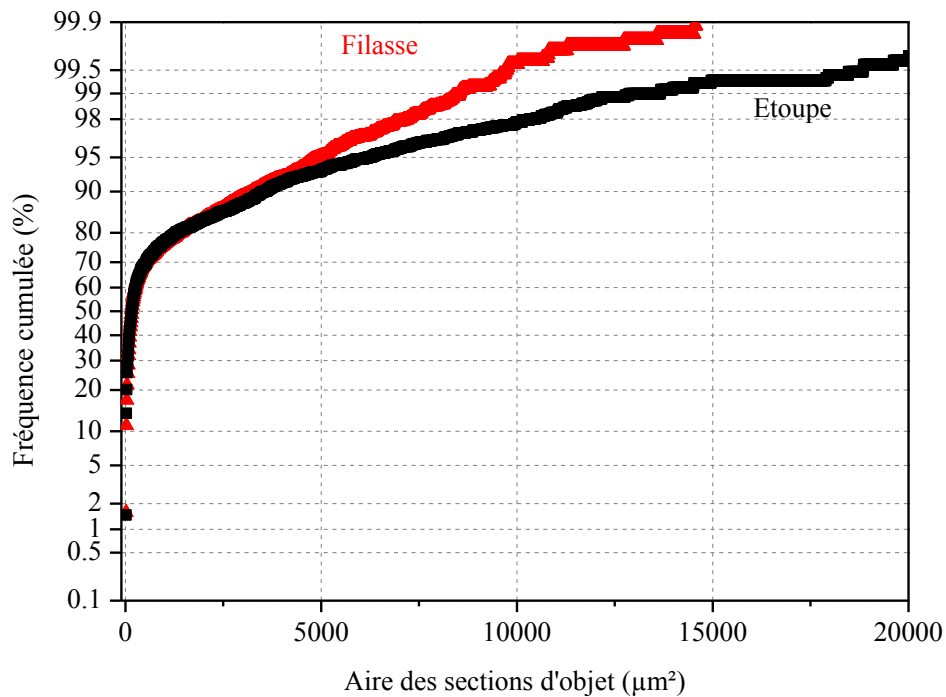


Figure 77 Fréquence cumulée tracée en fonction de l'aire des renforts, pour la filasse et les étoupes, dans la gamme $20\mu\text{m}^2$ à $20000\mu\text{m}^2$. Il est important de noter que l'échelle utilisée en ordonnée est volontairement non linéaire.

Il est possible de quantifier la proportion de fibres unitaires en ne considérant que les objets dont l'aire est inférieure à une valeur seuil sont des fibres élémentaires. La valeur seuil utilisée est l'aire maximale d'une section de fibre élémentaire, soit $452\mu\text{m}^2$ pour une fibre dont le diamètre est $24\mu\text{m}$. Les objets dont la surface est comprise entre $20\mu\text{m}^2$ et $452\mu\text{m}^2$ sont considérés comme des fibres unitaires. En basant les résultats sur cette hypothèse, 68 % des objets sont des fibres unitaires pour les deux types de fibres.

Le résultat de cette analyse peut être biaisé par deux aspects. Le premier concerne la morphologie des faisceaux: celle-ci évolue sur leurs longueurs. Ainsi un même faisceau peut, selon le plan d'observation, présenter une section différente avec des séparations ou regroupement de fibres élémentaires. De ce fait, une fibre élémentaire peut être considérée comme un objet individuel ou alors appartenant à un faisceau selon le plan d'observation de l'échantillon (Figure 76). Le deuxième aspect concerne le seuil utilisé pour déterminer la proportion de fibres unitaires. En effet il n'existe pas de corrélation directe entre le nombre de

fibres d'un faisceau et sa taille. Des faisceaux contenant plusieurs fibres peuvent posséder une faible section et inversement (Mattrand et al., 2014). De ce fait, un objet dont l'aire est inférieure à $452 \mu\text{m}^2$ peut être une fibre élémentaire ou un faisceau de plusieurs fibres de plus faible diamètre.

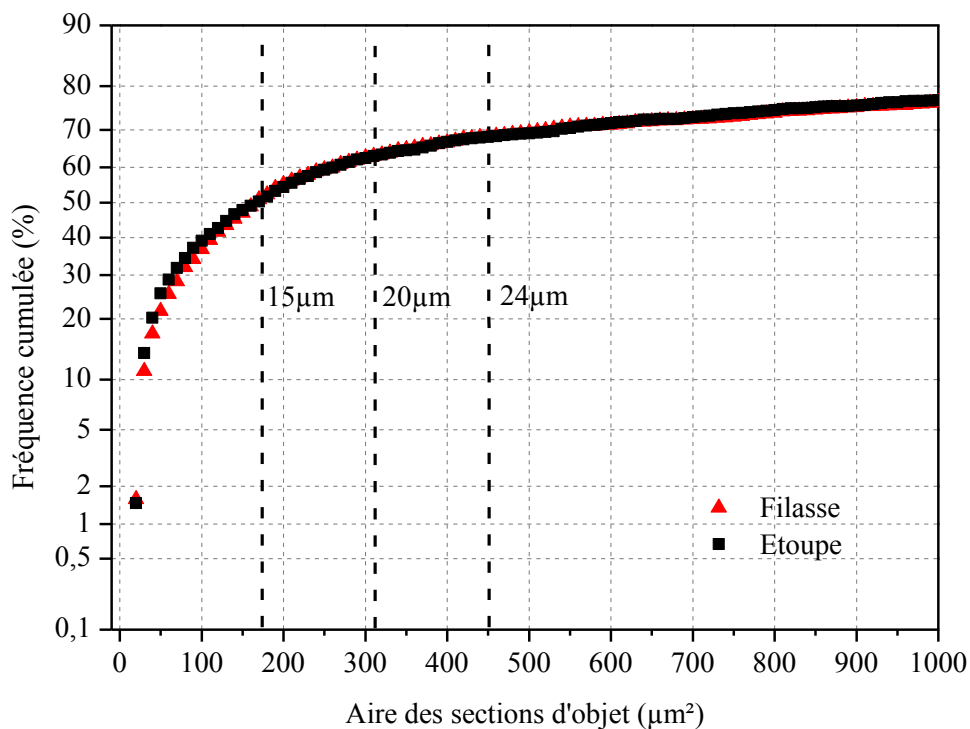


Figure 78 Fréquence cumulée tracée en fonction de l'aire des renforts, pour la filasse et les étoupes. Zoom dans la gamme $20 \mu\text{m}^2$ à $1000 \mu\text{m}^2$.

En utilisant respectivement un diamètre seuil de $20 \mu\text{m}$ ou de $15 \mu\text{m}$, la proportion de fibres unitaires est respectivement de 63 % et de 51 % (Figure 78). Le résultat de l'analyse est très sensible à la valeur seuil utilisée. Ceci montre que l'analyse ne permet pas de donner une valeur absolue de proportion de fibres unitaires, mais par contre, permet de définir un descripteur afin de comparer des lots de fibres entre eux.

Afin de mesurer la taille des faisceaux de fibres et le nombre de fibres par faisceaux, les résidus de xylème et de parenchyme corticaux, ont été supprimés des images à l'aide d'Image J, afin de ne prendre en compte que les fibres unitaires jointes par les lamelles mitoyennes. Ensuite les images sont analysées suivant la procédure décrite plus haut. Le nombre moyen de fibres unitaires par faisceaux est de 9 pour la filasse et 8 pour les étoupes, en considérant un diamètre moyen de fibres élémentaires de $15 \mu\text{m}$. Nous pouvons considérer ces deux valeurs identiques au vu des incertitudes de mesures.

En résumé, la surface moyenne des sections de filasse est plus petite que celle des étoupes, principalement à cause de la présence d'anas. La filasse est donc plus fine que les étoupes. Cependant, la surface moyenne des faisceaux est similaire pour les deux lots. Le nombre de fibres unitaires est aussi similaire.

Dans cette étude, les faisceaux de fibres issus d'étoupes sont 10 cm plus court que les faisceaux issus de filasse. Les étoupes contiennent 20% d'anas et légèrement plus de tissus corticaux que la filasse. La surface moyenne des sections d'étoupes est plus élevée à cause de la présence de groupes de faisceaux maintenus par des résidus de parenchyme corticaux et d'anas (1,5 % des objets en nombre). Mais si ces objets plus grands sont négligés, la finesse des deux produits est très similaire. Outre les enchevêtrements de fibres et la présence d'anas caractéristiques des étoupes, la filasse et les étoupes possèdent une morphologie similaire.

2.2. Propriétés mécaniques en traction des fibres unitaires

Dans cette partie, les propriétés mécaniques de fibres des deux lots sont évaluées par essai de traction sur fibres élémentaires.

La validité de l'échantillon de fibres prélevé pour la traction est tout d'abord évaluée. Le diamètre moyen des fibres unitaires sélectionnées pour les essais de traction ($\varnothing_{\text{traction}}$) est comparé au diamètre moyen des fibres unitaires mesurées sur des coupes transverse de faisceaux (\varnothing_{lot}). Les données sont reportées dans le Tableau 21. Les distributions des diamètres sont tracées sur les Figure 79 et Figure 80 .

Le diamètre moyen des fibres unitaires sollicitées en traction $\varnothing_{\text{traction}}$ est inférieur au diamètre moyen du lot de fibres \varnothing_{lot} (Tableau 21), cependant les valeurs sont très proches. L'extraction manuelle des fibres peut expliquer cet écart. Les diamètres des fibres unitaires ne sont pas significativement différents entre les deux produits, que ce soit pour \varnothing_{lot} ou $\varnothing_{\text{traction}}$ ($p>0.05$).

Comparaison des propriétés de fibres de lin provenant de filasse et d'étoupes

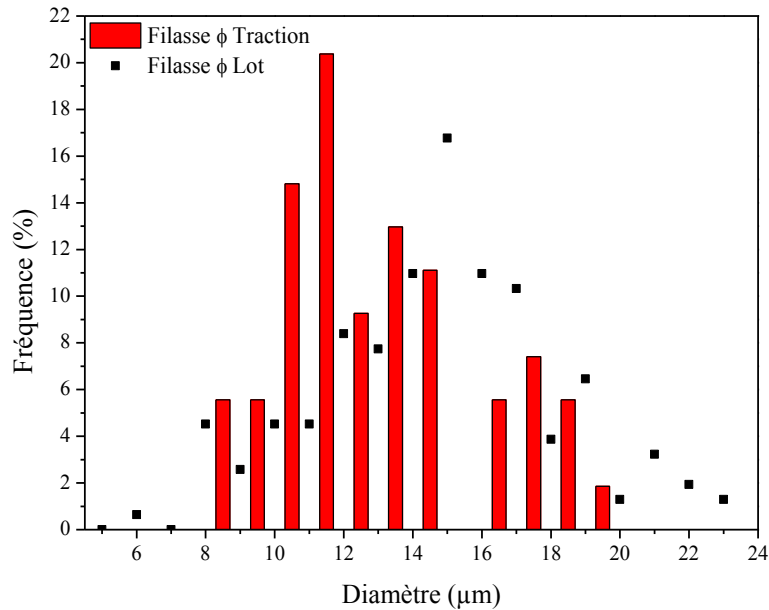


Figure 79 Comparaison entre la distribution des diamètres de fibres unitaires $\phi_{traction}$ et ϕ_{lot} pour la filasse.

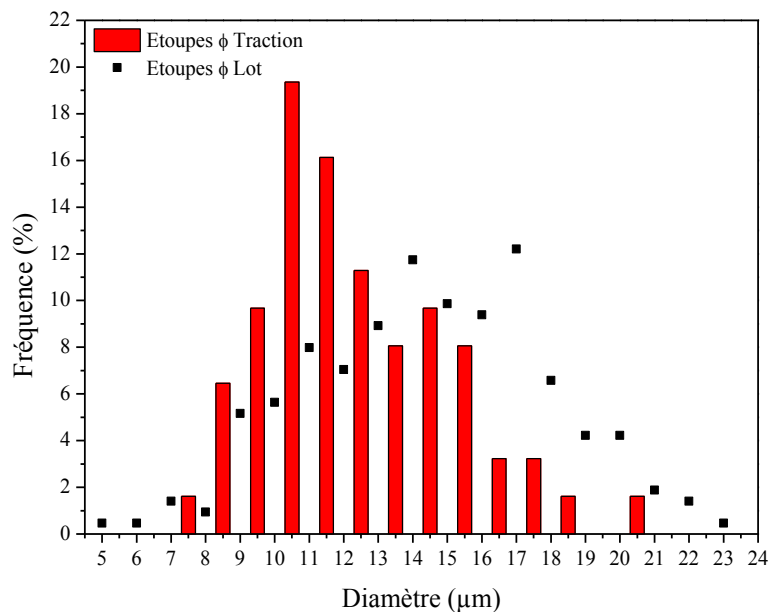


Figure 80 Comparaison entre la distribution des diamètres $\phi_{traction}$ et ϕ_{lot} pour les étoupes

Les propriétés mécaniques en traction des fibres unitaires de lin ont été mesurées pour les étoupes et la filasse. Les valeurs de module d'Young, contrainte et déformation à rupture sont présentées dans le Tableau 21.

Lot	ϕ_{lot} (µm)	$\phi_{traction}$ (µm)	E (GPa)	σ (MPa)	ε (%)
Filasse	$14,1 \pm 3,4$	$13,2 \pm 3,0$	$47,0 \pm 15,7$	937 ± 400	$2,0 \pm 0,6$
Etoupes	$14,0 \pm 3,5$	$12,4 \pm 2,7$	$50,8 \pm 15,7$	870 ± 342	$1,8 \pm 0,5$

Tableau 21 Propriétés en traction des fibres unitaires

En termes de valeurs moyennes, le module d'Young des étoupes (51 ± 16 GPa) est légèrement plus élevé que pour la filasse (47 ± 16 GPa), tandis que la contrainte à rupture de la filasse (937 ± 400 MPa) est plus élevée que celle des étoupes (870 ± 342 MPa). La déformation à rupture de la filasse ($2,0 \pm 0,6$ %) est plus élevée que la déformation à rupture des étoupes ($1,8 \pm 0,5$ %), ce qui est cohérent avec la différence de contrainte à rupture. Les résultats montrent des valeurs similaires pour les deux types de fibres si l'on considère la dispersion des données. Des tests t de Student ont été effectués afin d'évaluer si des différences significatives existent entre les deux lots. Les tests montrent que les valeurs de module d'Young, contrainte et déformation à rupture ne sont pas différentes ($p > 0,05$).

Les propriétés mécaniques des fibres unitaires étudiées dans ces travaux sont de l'ordre de grandeur des valeurs précédemment rapportées dans la littérature, pour des essais réalisés dans les mêmes conditions expérimentales (Baley et Bourmaud, 2014; Lefeuvre et al., 2013; Martin et al., 2013).

Andersons et al. (2009) ont réalisé des essais de traction sur fibres unitaires pour des étoupes et de la filasse. Ces précédents travaux ont montrés une plus grande différence pour la contrainte à rupture, avec des valeurs de 660 ± 330 MPa et 860 ± 330 MPa respectivement pour la filasse et les étoupes. Ces essais ont été réalisés sur des échantillons de fibres élémentaires dont la longueur libre était de 5 mm. Dans ces travaux, il faut remarquer que les fibres issues d'étoupes possèdent des propriétés mécaniques supérieures à celles issues de filasse.

Les résultats mettent en évidence que les fibres unitaires provenant d'étoupes et de filasse possèdent des propriétés mécaniques similaires malgré les différences d'apparences visuelles et morphologiques des deux matières (Figure 72). De plus ceci montre que les étoupes ne sont pas des fibres aux propriétés mécaniques faibles, même si elles ont été arrachées du reste de la plante durant le teillage. Cet aspect peut aussi indiquer que les fibres teillées et les étoupes proviennent de la même partie de la plante. Les étoupes seraient aléatoirement retirées du flux de matière de la ligne de teillage. Les paramètres qui influencent les proportions d'étoupes relèveraient du domaine du savoir-faire de culture et de teillage des fibres. Les points critiques sont notamment la bonne conduite de l'arrachage et l'uniformité des andains (lignes) de pailles déposés sur le champ lors du rouissage, le retournement adéquat des pailles, l'homogénéité du rouissage, la qualité de l'enroulage des pailles lors de la récolte et celle du déroulage des pailles lors du teillage.

En considérant nos résultats (Tableau 21), les fibres issues d'étoupes et de filasse possèdent des propriétés mécaniques en traction similaires. L'utilisation d'un processus de

nettoyage et de cardage approprié afin d'aligner les étoupes, pourrait permettre de fournir un produit pour des applications en tant que renfort unidirectionnel de composites.

2.3. Propriétés des composites à renfort unidirectionnel Lin Epoxy

Une série de matériaux composites à matrice époxy et renfort unidirectionnel (UD) de lin a été réalisée à partir d'étoupes et de filasse. 21 et 24 éprouvettes ont été réalisées respectivement avec les deux produits. Les composites ont été réalisés suivant la procédure décrite dans le chapitre II section 2.2.

2.3.1. Etude de la morphologie des renforts au sein des éprouvettes

Pour cette partie, 4 éprouvettes sont étudiées et présentées dans le Tableau 22. Les essais sont réalisés sur des éprouvettes dont les renforts sont respectivement de la filasse ou des étoupes avec des fractions volumiques nominales de 0,6 et de 0,2.

Type	Fibre	V _f nominal
1	Filasse	0,6
2	Etoupes	0,6
3	Filasse	0,2
4	Etoupes	0,2

Tableau 22 Descriptif des éprouvettes utilisées pour l'étude.

2.3.1.1. Analyse des éprouvettes par Microtomographie à rayons X

Des analyses par micro tomographie à rayons-X ont été effectuées afin d'étudier la microstructure et la santé matière des échantillons sur un volume de matière représentatif. L'analyse est effectuée sur la partie centrale des éprouvettes (Figure 81). Les dimensions du volume analysé sont 2x6x30 mm³. La résolution axiale est de 19µm (taille d'un pixel).

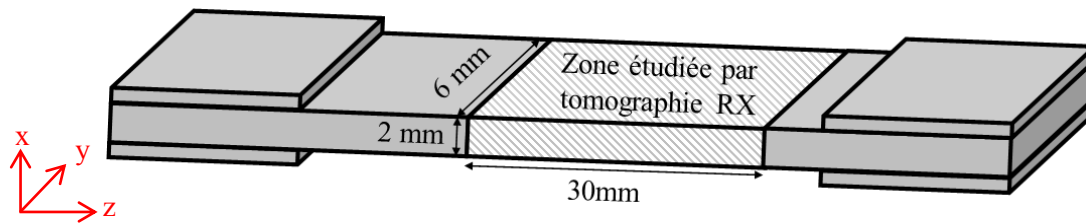


Figure 81 Schéma simplifié d'une éprouvette de traction mettant en évidence le volume analysé par microtomographie. Le repère (x,y,z) sera utilisé par la suite.

Le faible contraste entre fibre et matrice limite l'observation de l'organisation des fibres au sein de l'éprouvette. Il est cependant possible d'évaluer le volume des pores présents au sein de l'éprouvette dans la zone d'analyse.

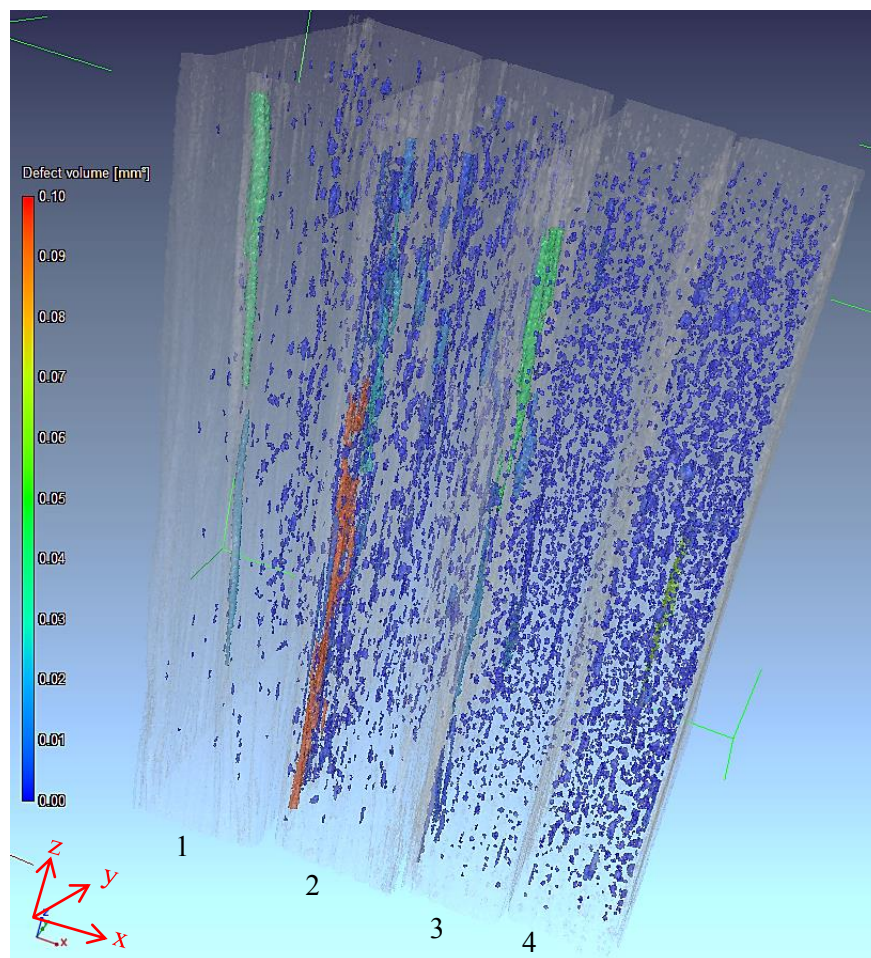


Figure 82 Vue en 3 dimensions des 4 éprouvettes Lin/Epoxy à renfort unidirectionnel réalisée à partir des analyses par microtomographie à Rayons-X. Les vides présents dans la matière sont mis en évidence. L'échelle sur la gauche permet d'associer une couleur à chaque gamme de taille de pores. Le repère (x,y,z) est défini Figure 81.

La Figure 82 est une représentation en 3 dimensions des 4 types d'éprouvette étudiés. Les vides présents dans la matière sont mis en évidence. Les pores les plus petits sont en bleu,

les plus grands sont en rouge ($0,00006$ à $0,1 \text{ mm}^3$). Les vides présents au sein des éprouvettes possèdent des tailles, une répartition et des formes variées. Les vides sont majoritairement des cavités de formes sphériques, possiblement des bulles d'air au sein de la matrice. La taille de ces vides varie de $0,000056 \text{ mm}^3$ à $0,005 \text{ mm}^3$ soit une sphère dont le diamètre est respectivement $50 \text{ }\mu\text{m}$ et $200 \text{ }\mu\text{m}$.

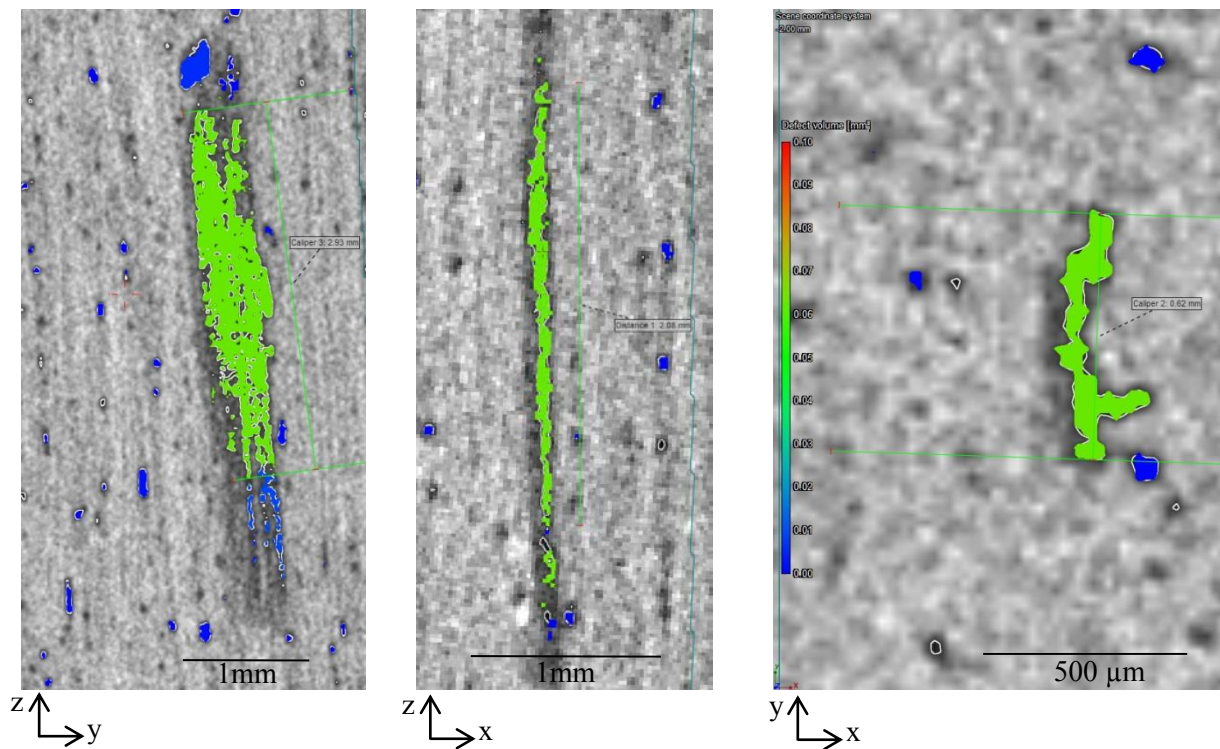


Figure 83 Vue sur une cavité de forme allongée selon 3 directions.

D'autres vides de tailles plus élevées sont observables. Ils possèdent des formes allongées et aplaties, dont une des dimensions est plus élevée dans la direction des fibres. La Figure 83 présente une vue selon 3 plans d'une même cavité, dont le volume est de $0,6 \text{ mm}^3$ (vert). Certains de ces vides s'étendent sur plusieurs millimètres. Ces vides représentent une fraction plus réduite. Leurs tailles s'étendent de $0,006 \text{ mm}^3$ à $0,1 \text{ mm}^3$. Au vu de leur orientation et de leurs tailles, ces vides semblent être des zones où les fibres ne sont pas imprégnées par la matrice.

La Figure 83 présente des vues en deux dimensions dans les trois directions de l'espace d'une cavité de forme allongée au sein de l'éprouvette 4.

La grande majorité des pores détectés semblent être des bulles d'air contenues dans la matrice. L'imprégnation par voie humide des renforts avant compression serait à l'origine de ces vides. On note néanmoins une plus faible porosité pour les matériaux renforcés avec de la filasse (Tableau 23).

Type	Fibre	V _f cible	Fraction de porosité
1	Filasse	0,6	0,002
2	Etoupe	0,6	0,0097
3	Filasse	0,2	0,0073
4	Etoupe	0,2	0,0095

Tableau 23 Analyse de la porosité des éprouvettes par microtomographie.

Les pores observés sont répartis de manière homogène et aléatoire dans le volume des éprouvettes, surtout pour les pores cylindriques. La fraction volumique de porosité des échantillons étant inférieure à 1 %, sa contribution aux propriétés mécaniques des matériaux composites sera considérée comme négligeable par la suite.

2.3.1.2. Etude de la répartition et de la fraction volumique des fibres au sein d'une éprouvette

Des coupes transverses des éprouvettes ont été étudiées à l'aide du MEB afin d'étudier l'organisation des renforts au sein de la matrice et d'estimer la fraction volumique de fibres. Bien que l'observation soit limitée à un plan particulier de l'échantillon, la résolution de la technique d'analyse permet de distinguer les renforts de la matrice. Celle-ci est de 0,5µm (taille du pixel sur l'image) lorsque l'échantillon est observé avec un grossissement x100.

Les coupes des éprouvettes ont été reconstituées à partir d'une série d'observations par MEB. Environ 20 images sont assemblées à l'aide du logiciel Image Composite Editor. La fraction surfacique de fibres a été estimée en analysant les vues en coupe des quatre types d'éprouvettes. L'analyse est effectuée à l'aide du logiciel Image J (Chapitre II 3.3).

En parallèle, la fraction volumique de fibres des 4 éprouvettes a été estimée par mesure de la masse volumique d'un échantillon de celles-ci (Chapitre II 4.1), afin de pouvoir comparer les deux méthodes. Les masses volumiques des fibres sont 1,398 g cm⁻³ et 1,374 g cm⁻³ respectivement pour la filasse et pour les étoupes.

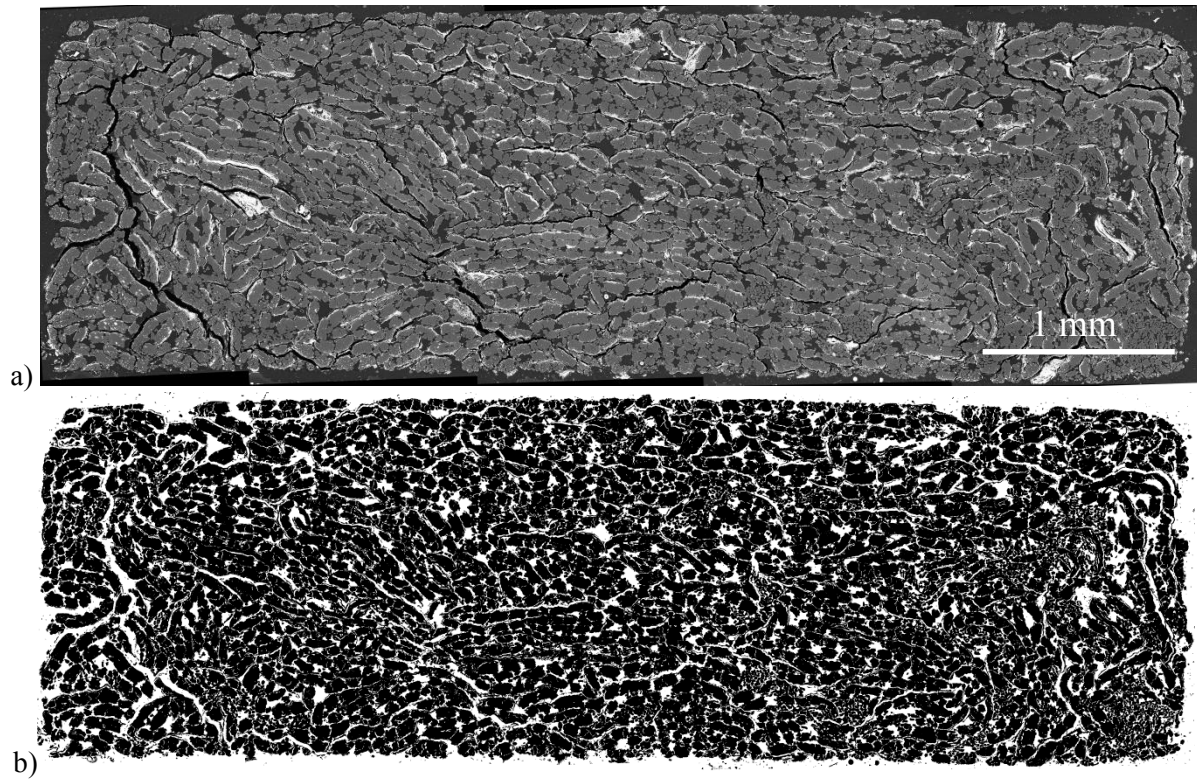


Figure 84 a) Vue en coupe de l'éprouvette 1. b) Image binaire mettant en évidence la fraction apparente de renforts en noir. $V_f=0,67$.

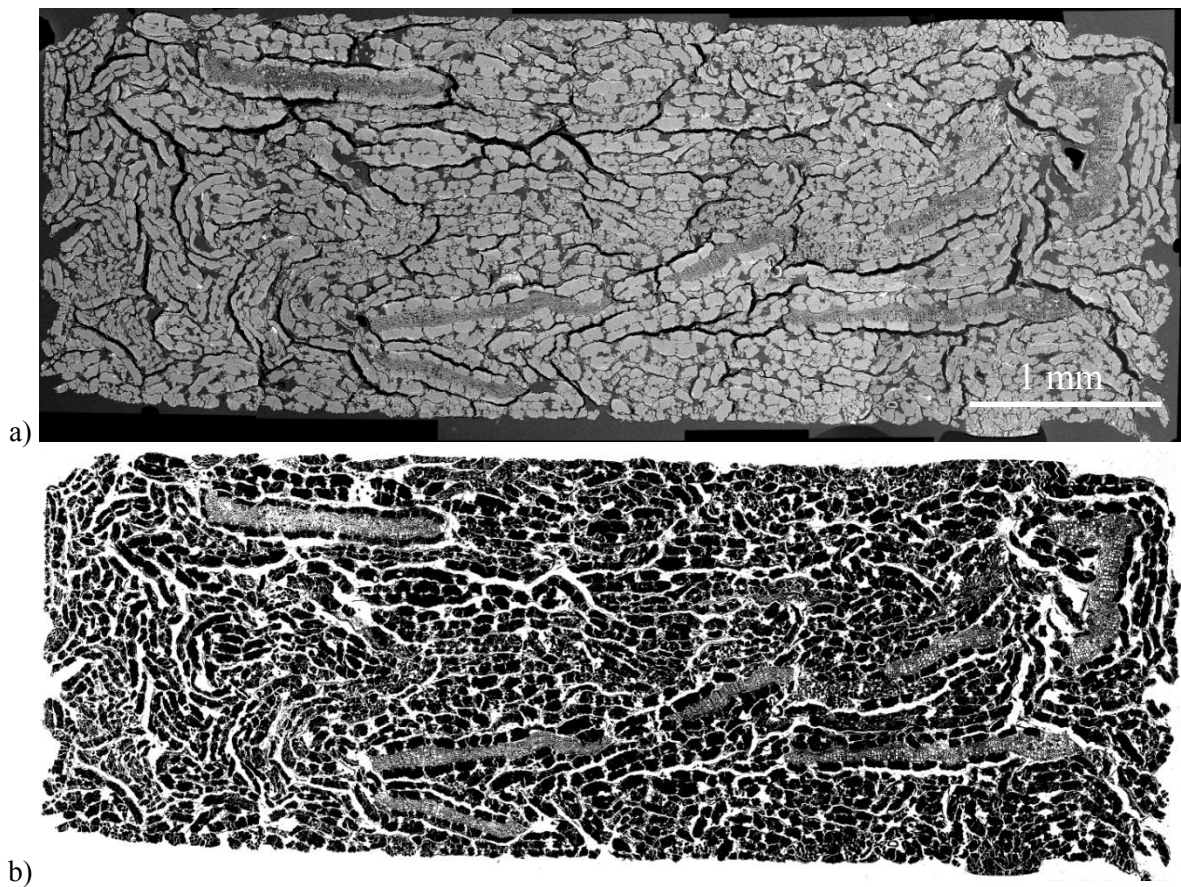


Figure 85 a) Vue en coupe de l'éprouvette 2. b) Image binaire mettant en évidence la fraction apparente de renforts en noir. $V_f=0,65$.

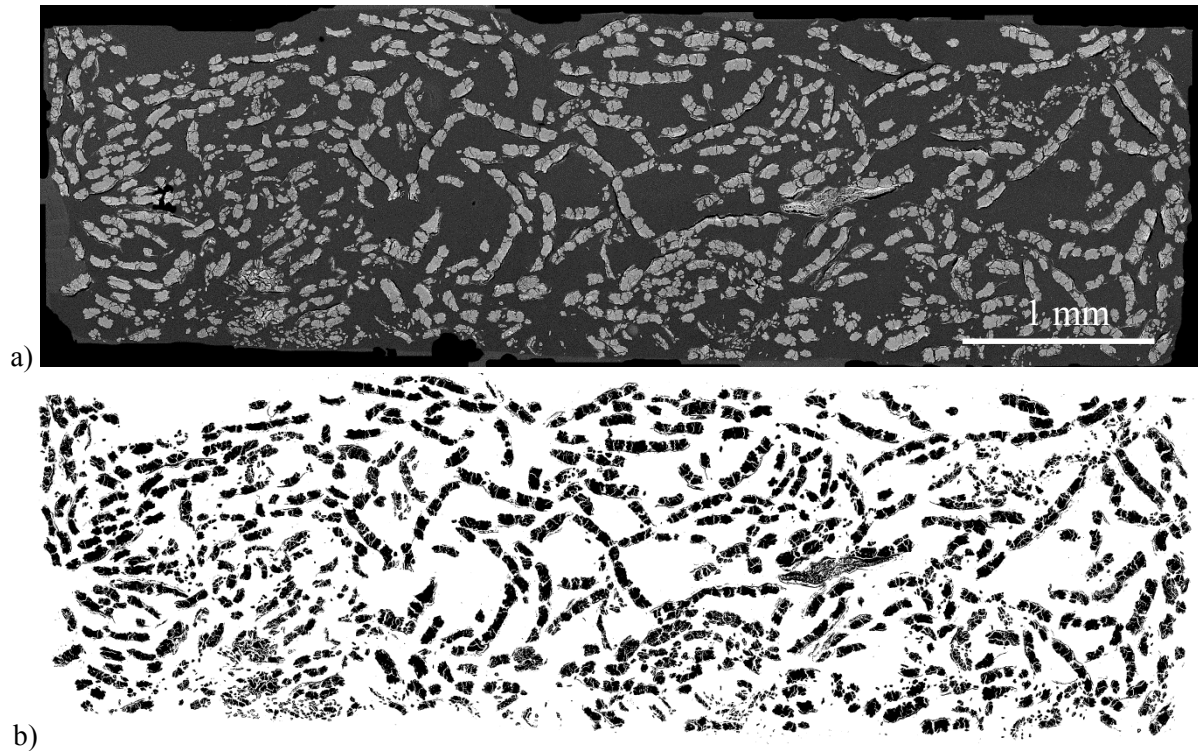


Figure 86 a) Vue en coupe de l'éprouvette 3. b) Image binaire mettant en évidence la fraction apparente de renforts en noir. $V_f=0,27$.

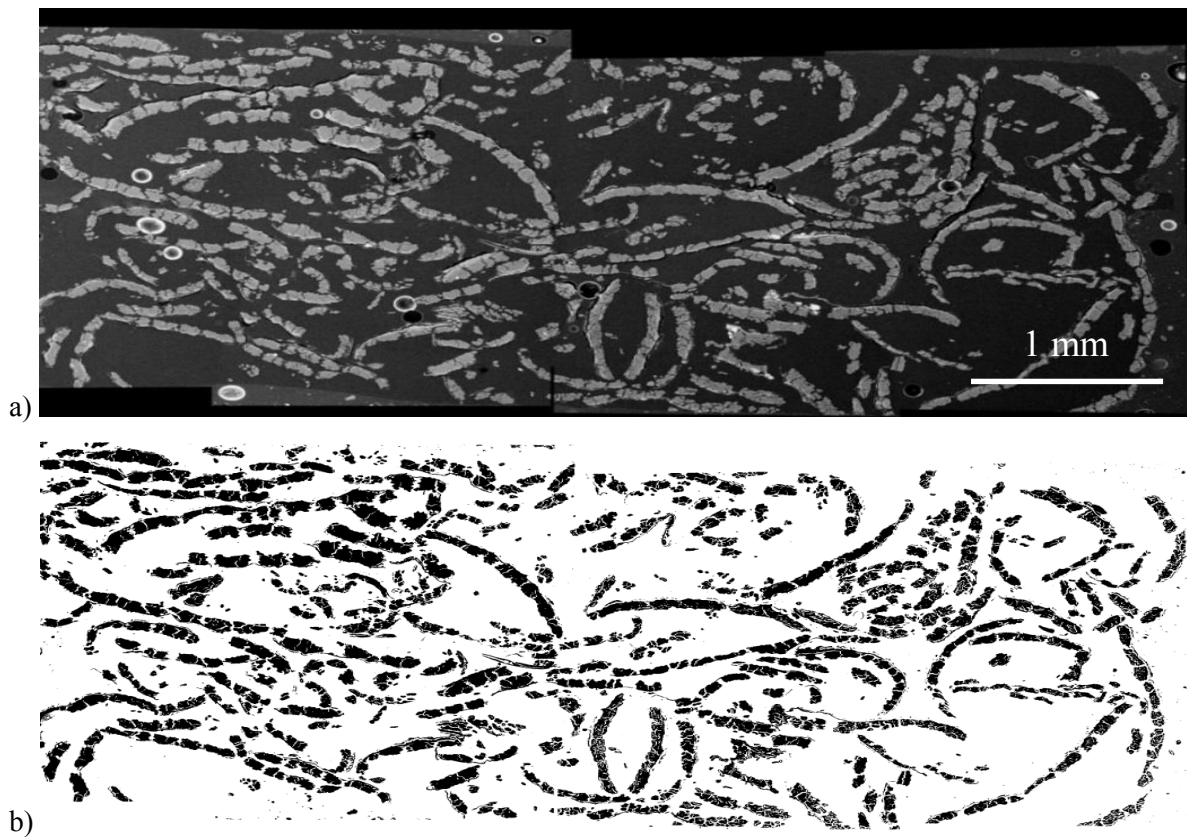


Figure 87 a) Vue en coupe de l'éprouvette 4. b) Image binaire mettant en évidence la fraction apparente de renforts en noir. $V_f=0,24$.

Pour une faible fraction volumique de fibres, 0,27 pour la filasse et 0,24 pour les étoupes, les faisceaux de fibres ne sont pas régulièrement répartis au sein de l'éprouvette (Figure 86 et Figure 87). On note des zones plus riches en matrice. La présence de groupes de faisceaux de fibres possédant une section à la forme allongée peut limiter une répartition homogène des renforts. D'autres zones sont plus riches en matrice.

Pour une fraction de fibres plus élevée, 0,67 pour la filasse et 0,65 pour les étoupes, la fraction fibreuse est compactée et les faisceaux se tassent les uns contre les autres, réduisant l'espace et l'hétérogénéité de la répartition (Figure 84 et la Figure 85). Malgré la forme allongée de la section des faisceaux de fibres, il est possible d'atteindre des fractions volumiques supérieures à 0,6, grâce à l'application de la pression pendant la mise en œuvre.

Le Tableau 24 présente les résultats de l'analyse d'image. V_f^{image} correspond à la fraction surfacique apparente déterminée par analyse d'image, $V_f^{masse\ vol}$ correspond à la fraction volumique déterminée par la mesure de la masse volumique du composite décrite dans le chapitre II.4.1.

Fibre	Type	Figure	V_f^{image}	$V_f^{masse\ vol.}$
Filasse	3	Figure 86	0,27	0,24
Etoupe	4	Figure 87	0,24	0,22
Filasse	1	Figure 84	0,67	0,61
Etoupe	2	Figure 85	0,65	0,58

Tableau 24 Fraction de fibres contenue dans les éprouvettes évaluée par analyse d'image sur une surface polie d'éprouvette et par mesure de masse volumique sur un échantillon.

Les fractions volumiques sont de l'ordre de grandeur des valeurs cibles recherchées (Tableau 22) et les faibles différences observées semblent liées aux conditions de mise en œuvre. Les valeurs de fraction de fibres estimées par analyse d'image sont plus élevées que celles estimées grâce à la mesure de la masse volumique des matériaux.

La mesure de la fraction volumique par analyse d'image donne une information limitée à un plan de l'éprouvette, tandis que la mesure réalisée par l'intermédiaire de la masse volumique donne une information sur un volume significatif d'éprouvette. Cependant, la mesure par analyse d'image permet de s'affranchir des biais expérimentaux introduits par la mesure de masse volumique. En effet la mesure dépend de la masse volumique effective des fibres et du fluide utilisé pour l'essai. Par ailleurs, la présence d'une faible fraction de porosité n'est pas prise en compte dans la mesure.

Cependant, cette dernière méthode permet de mesurer la fraction volumique de manière rapide. Etant donné la facilité et la rapidité de la méthode, la fraction volumique de fibres des éprouvettes de traction utilisées pour ces travaux est déterminée par la suite par la mesure de la masse volumique d'un échantillon d'éprouvette.

2.3.2. Propriétés mécaniques en traction de composites à renfort unidirectionnel

Une série de matériaux composites à matrice époxy et renfort unidirectionnel (UD) de lin a été réalisée à partir d'étoupes et de filasse. 21 et 24 éprouvettes ont été réalisées respectivement avec les deux produits. La fraction volumique de fibres varie entre 0,2 et 0,7. Les propriétés en traction des éprouvettes sont mesurées dans le sens longitudinal des fibres par essais de traction comme décrit dans le chapitre 2. La fraction volumique de fibres des éprouvettes est déterminée par mesure de la masse volumique d'un échantillon d'éprouvette après essais (Chapitre II.4.1).

2.3.2.1. Courbe contrainte/déformation des éprouvettes en traction longitudinale

La Figure 88 montre le comportement en traction longitudinale d'une éprouvette de composite UD renforcé par des fibres de verre E, ainsi que d'une éprouvette de matériau composite à renfort UD de lin, ici pour des étoupes. Les courbes contrainte/déformation présentées sont celles d'éprouvettes dont la fraction volumique de fibres est de 0,45.

Pour un composite UD renforcé par des fibres de verre E, le comportement est presque linéaire et caractéristique d'un matériau quasi élastique fragile. Pour un composite UD renforcé par des fibres de lin, la courbe montre un comportement non linéaire en traction. Ce type de courbe est typique des composites UD à matrice thermdurcissable renforcés par des fibres de lin (Baley et al., 2012; Coroller et al., 2013; Hughes et al., 2007; Marrot et al., 2014). Plusieurs domaines associés à des changements de pente peuvent être distingués. Un changement de pente est observé vers 0,2 %, puis à partir d'une certaine déformation (environ 0.6%) la pente de la courbe se stabilise et l'évolution de la contrainte est quasi linéaire jusqu'à la rupture de l'éprouvette.

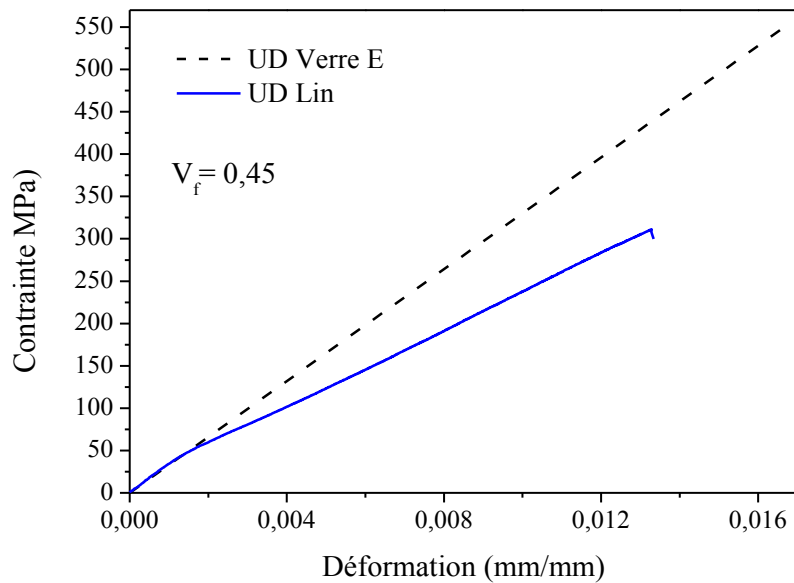


Figure 88 Comportement en traction longitudinale d'une éprouvette de composite à renfort UD de lin (étoupes) et d'une éprouvette de composite à renfort UD de verre E.

En observant le comportement en traction d'une fibre unitaire, un parallèle peut être fait avec le comportement d'un composite UD renforcé par des fibres de lin (Figure 89). Cependant le comportement du matériau dépend également du comportement de la matrice, de la présence de faisceaux de fibres (dont le comportement en traction est différent de celui d'une fibre unitaire) et de la discontinuité du renfort et des défauts d'alignement.

Il n'est pas possible d'observer de différence au niveau de la courbe de comportement en traction pour des composites renforcés avec de la filasse ou des étoupes. Le module d'élasticité des matériaux composites est calculé à partir des courbes de contrainte/déformation. Le module d'élasticité des composites UD est obtenu en calculant la pente de la courbe. Deux gammes de déformation sont considérées: En pied de courbe $\Delta\epsilon_1$ (0,0005-0,0015) et dans la dernière partie de la courbe dans la gamme de déformation $\Delta\epsilon_2$ (0,010-0,011) (Figure 88). La gamme de déformation $\Delta\epsilon_1$ correspond à la zone de déformation élastique des matériaux et permet de mesurer le module élastique. La gamme de déformation $\Delta\epsilon_2$ est utilisée afin de pouvoir comparer la rigidité des matériaux composites avec celles des fibres unitaires. En effet, le module de traction des fibres unitaires est mesuré dans la dernière partie de la courbe de traction.

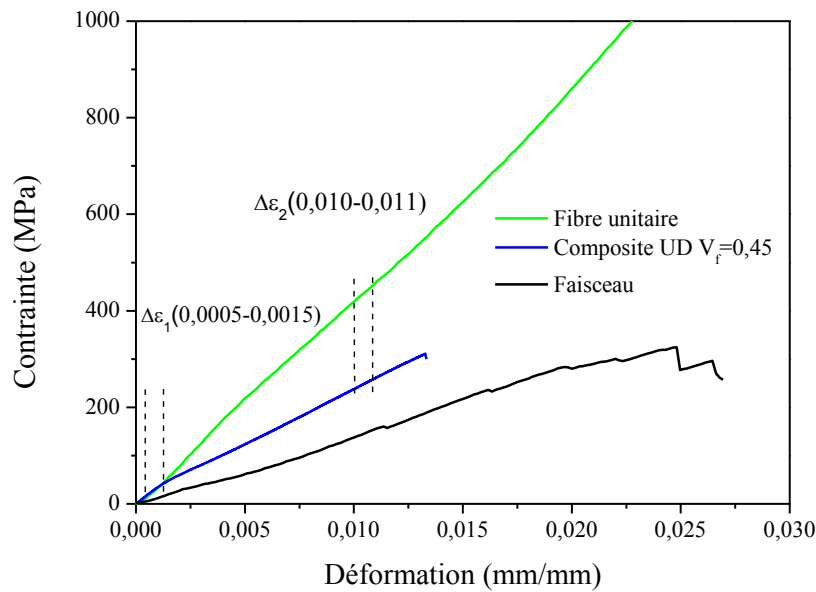


Figure 89 Comportement en traction longitudinale d'une éprouvette de composite à renfort UD de lin, d'une fibre unitaire de lin, ainsi que d'un faisceau.

A défaut de mesurer la rigidité des matériaux dans leur domaine élastique, la mesure du module de traction doit être effectuée dans la même gamme de déformation pour les composites et pour les fibres. Ceci dans le but de pouvoir utiliser des modèles micromécaniques pour prédire la rigidité théorique des composites.

2.3.2.2. Propriétés mécaniques en traction et comparaison des estimations obtenues avec des modèles micromécaniques

Dans ce paragraphe, les résultats d'essais de traction longitudinale réalisés sur les éprouvettes sont analysés. Les propriétés mécaniques en traction de chaque éprouvette sont regroupées pour quatre fractions volumiques, puis moyennées. Les données sont synthétisées dans le Tableau 25. Pour comparaison, les propriétés mécaniques en traction de matériaux composites UD Verre/Epoxy sont ajoutées au tableau. Afin d'analyser les données de manière graphique, les données de module d'Young, de contrainte à rupture et de déformation à rupture obtenues sont tracées en fonction de la fraction volumique de fibres, respectivement dans la Figure 90, la Figure 92 et la Figure 93.

Pour les deux matériaux composites, le module de traction et la contrainte à rupture augmentent de manière régulière en fonction de la fraction volumique de fibres, tandis que la déformation à rupture diminue.

Echantillon	V_f (%)	Module de traction $\Delta\epsilon_2$ (GPa)	Module de traction $\Delta\epsilon_1$ (GPa)	Contrainte à rupture (MPa)	Déformation à rupture (%)
Résine époxy	0	$3,4 \pm 0,1$		78 ± 2	$4,9 \pm 0,6$
Epoxy/filasse UD	$26 \pm 0,4$	$16,0 \pm 1,0$	$16,3 \pm 1,9$	234 ± 12	$1,7 \pm 0,1$
	$40 \pm 1,5$	$21,0 \pm 1,5$	$24,6 \pm 3,1$	269 ± 27	$1,4 \pm 0,3$
	$48 \pm 4,3$	$25,4 \pm 1,1$	$30,8 \pm 1,1$	316 ± 41	$1,3 \pm 0,2$
	$65 \pm 3,3$	$33,6 \pm 4,1$	$37,2 \pm 5,0$	353 ± 12	$1,2 \pm 0,1$
Epoxy/étoupes UD	$27 \pm 3,0$	$14,6 \pm 2,7$	$18,6 \pm 2,6$	203 ± 25	$1,4 \pm 0,1$
	$36 \pm 1,5$	$17,8 \pm 1,5$	$22,4 \pm 0,6$	231 ± 23	$1,3 \pm 0,1$
	$42 \pm 0,9$	$21,6 \pm 3,1$	$28,2 \pm 5,3$	280 ± 36	$1,3 \pm 0,2$
	$62 \pm 2,7$	$28,6 \pm 2,2$	$38,3 \pm 3,1$	331 ± 24	$1,2 \pm 0,1$
Epoxy/verre UD (Coroller et al., 2013)	25 ± 1	$21 \pm 1,1$	/	350 ± 17	$2,2 \pm 0,1$
	32 ± 1	$25 \pm 0,9$	/	446 ± 12	$2,3 \pm 0,1$
	45 ± 1	$34 \pm 1,8$	/	547 ± 23	$2,3 \pm 0,3$

Tableau 25 Propriétés mécaniques moyennes mesurées par essai de traction sur les matériaux composites lin/époxy unidirectionnel réalisés avec la filasse et les étoupes de lin. Comparaison avec les propriétés des matériaux composites unidirectionnel verre/époxy mis en œuvre avec la même méthode de moulage.

Cette similitude de comportement est à mettre en parallèle avec les propriétés mécaniques équivalentes des fibres mesurées par traction de fibres unitaires. D'après les résultats expérimentaux et au vu de la dispersion des données (Tableau 25), les matériaux composites renforcés par de la filasse ou des étoupes possèdent des propriétés mécaniques similaires en traction longitudinale.

Cependant, la fraction volumique maximale et la contrainte maximale associée atteinte en traction est plus faible pour les composites renforcés d'étoupes. Ce résultat peut-être expliqué par la présence de faisceaux de fibres de taille plus importante dans les étoupes, ainsi que des résidus d'anas et d'écorce. La compaction est alors limitée. Pour la filasse, la présence de faisceaux dont la section est plus faible permet d'obtenir une meilleure répartition des fibres au sein de la matrice. Cette division plus élevée des faisceaux permet d'obtenir une plus grande surface de transfert de charge entre fibre et matrice et permet d'augmenter la contrainte à rupture.

En comparaison avec les composites verre/époxy, les composites lin/époxy possèdent des propriétés mécaniques absolues plus faibles pour une fraction volumique de fibres données. Nous ne présentons pas de propriétés spécifiques ici. Des modèles micromécaniques basés sur la loi des mélanges ont été utilisés afin de comparer les valeurs expérimentales obtenues à des estimations théoriques.

Analyse de la rigidité

En connaissant le module élastique de la matrice époxy E_m (Tableau 25) et le module de traction du renfort $E_{f,L}$, le module de traction des matériaux composites, peut être calculé à l'aide de la loi des mélanges donnée par l'équation ci-dessous. La valeur moyenne du module de traction des deux lots de fibres unitaires dans la gamme $\Delta\epsilon_2$ est choisie pour les calculs ($E_{f,L} = 48$ MPa).

$$E_{UD,L} = E_{f,L} \times V_f + (1 - V_f) \times E_m$$

Où $E_{UD,L}$ est le module longitudinal calculé, $E_{f,L}$ est le module de traction des fibres unitaires, E_m est le module élastique de la matrice et V_f est la fraction volumique de fibres. Des estimations supérieures et inférieures sont également calculées afin de tenir compte de la dispersion des propriétés mécaniques des fibres unitaires. Celles-ci sont définies en introduisant dans le modèle une valeur supérieure de module de fibre unitaire définie par $E_{f,L} + ET$ où une valeur inférieure de module de fibre unitaire définie par $E_{f,L} - ET$.

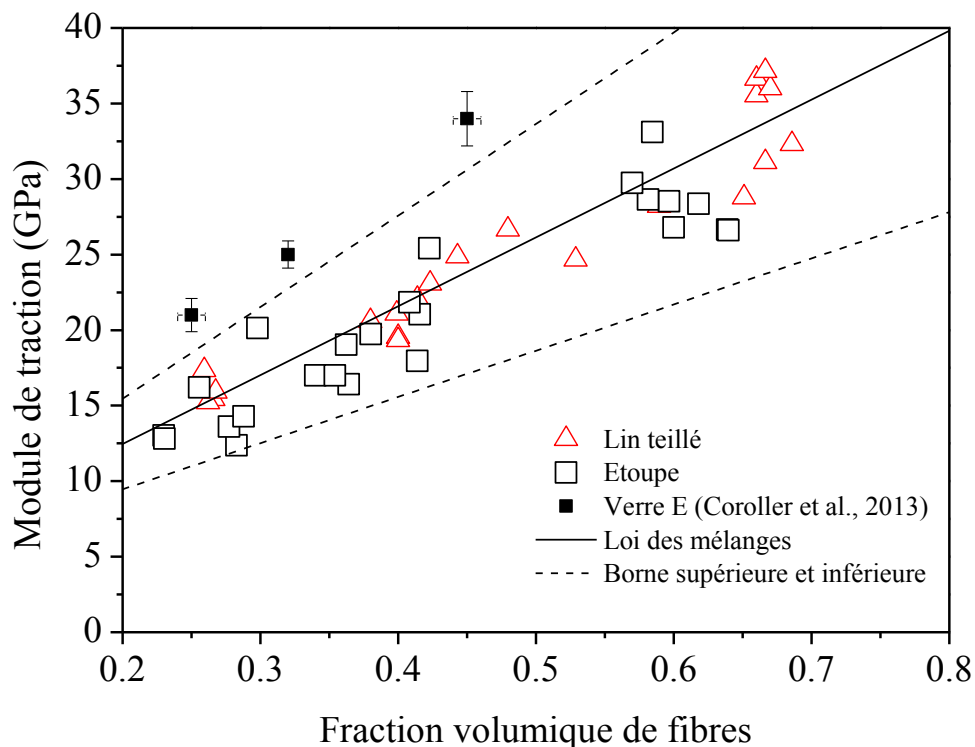


Figure 90 Module de traction longitudinal des composites à renforts UD en fonction de la fraction volumique de fibres. Chaque point représente une éprouvette.

Les valeurs de module de traction des matériaux composites mesurées par essai de traction suivent la tendance estimée par la loi des mélanges et sont comprises entre les limites hautes et basses définies (Figure 90).

Influence de la gamme de déformation utilisée pour calculer le module de traction

Les valeurs de module de traction des composites ont été mesurées pour deux gammes de déformation: en pied de courbe $\Delta\epsilon_1$ (0,0005-0,0015) et dans la dernière partie de la courbe dans la gamme de déformation $\Delta\epsilon_2$ (0,010-0,011) (Figure 88). Les résultats expérimentaux sont comparés avec des valeurs estimées par la loi des mélanges en utilisant dans chaque cas, les valeurs de module de traction des fibres mesurées dans les gammes de déformation correspondantes (Figure 91). Le module de traction des fibres unitaires mesuré en pied de courbes ($\Delta\epsilon_1$) est de 55 ± 17 GPa, soit une valeur supérieure à la valeur de module calculée en fin de courbe avant la rupture (47 ± 16 GPa). La valeur mesurée dans la gamme $\Delta\epsilon_2$ est de 46 ± 15 GPa soit une valeur identique à la valeur de module calculée en fin de courbe avant la rupture.

Echantillon	V_f (%)	E exp $\Delta\epsilon_1$ (GPa)	E modèle $\Delta\epsilon_1$ (GPa)	E exp $\Delta\epsilon_2$ (GPa)	E modèle $\Delta\epsilon_1$ (GPa)
Résine époxy	0	$3,4 \pm 0,1$	3,4	$2,7 \pm 0,1$	2,7
Epoxy/filasse UD	$26 \pm 0,4$	$16,3 \pm 1,9$	17,0	$16,0 \pm 1,0$	12,4
	$40 \pm 1,5$	$24,6 \pm 3,1$	24,2	$21,0 \pm 1,5$	18,9
	$48 \pm 4,3$	$30,8 \pm 1,1$	28,3	$25,4 \pm 1,1$	22,7
	$65 \pm 3,3$	$37,2 \pm 5,0$	37,1	$33,6 \pm 4,1$	30,7
Epoxy/étoupes UD	$27 \pm 3,0$	$18,6 \pm 2,6$	18,1	$14,6 \pm 2,7$	13,2
	$36 \pm 1,5$	$22,4 \pm 0,6$	26,0	$17,8 \pm 1,5$	20,1
	$42 \pm 0,9$	$28,2 \pm 5,3$	30,5	$21,6 \pm 3,1$	24,2
	$62 \pm 2,7$	$38,3 \pm 3,1$	40,1	$28,6 \pm 2,2$	32,7

Tableau 26 Comparaison des rigidités moyennes des composites à renforts UD pour deux gammes de déformation et comparaison des rigidités expérimentales avec des valeurs générée par la loi des mélanges.

Les données expérimentales sont présentées graphiquement pour les composites réalisés à partir de filasse (Figure 91).

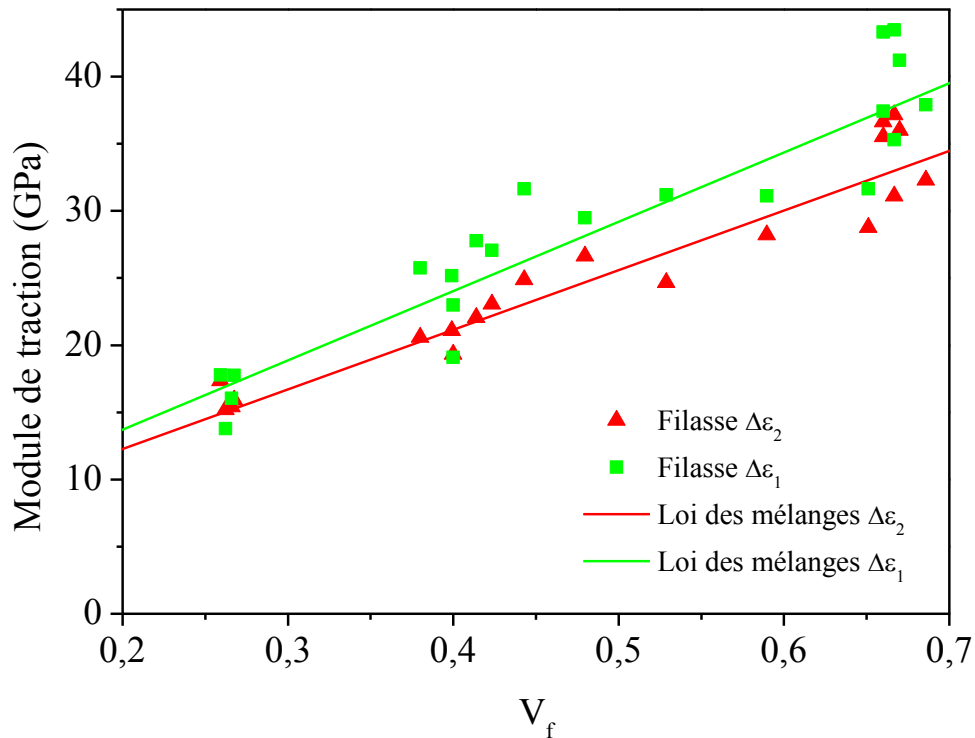


Figure 91 Comparaison des rigidités des composites à renforts UD pour deux gammes de déformation, en fonction de la fraction volumique de fibres. Chaque point représente une éprouvette. Les données sont présentées pour la filasse.

On note que pour une même éprouvette, la rigidité mesurée est plus élevée en pied de courbe ($\Delta\epsilon_1$) qu'en fin de courbe ($\Delta\epsilon_2$). Il est donc nécessaire de tenir compte de ces différences de rigidité lors du dimensionnement de pièces biocomposites

Analyse de la résistance

Le comportement à rupture des matériaux est complexe, et les valeurs de contraintes à rupture mesurées sont plus faibles que les valeurs estimées par la loi des mélanges. Ce phénomène est également observé pour des composites renforcés par des fibres synthétiques. En effet, la contrainte à rupture en traction d'un composite renforcé par un renfort unidirectionnel discontinu est complexe. Les fibres unitaires de lin ont une longueur comprise entre 30 et 80 mm et sont ici groupées en faisceaux, tandis que la simple loi des mélanges fait l'hypothèse de l'utilisation de renforts individualisés et continus. De plus, la contrainte à rupture des fibres unitaires de lin est dispersée et la taille de la section polygonale varie le long de la longueur. En outre, le degré d'individualisation des faisceaux de fibres joue un rôle

prépondérant dans les propriétés de rupture des matériaux composites. Le comportement à rupture en traction n'est pas directement proportionnel à la contrainte à rupture des fibres unitaires, étant donné que les endommagements cumulés sont à prendre en compte.

Les valeurs expérimentales de contrainte à rupture sont comparées à des valeurs estimées par une loi des mélanges modifiée donnée par l'équation ci-dessous (Coroller et al., 2013; R. F. Gibson, 2011). Cette équation est valable si $\varepsilon_{f,L} < \varepsilon_m$ avec $\varepsilon_{f,L}$ la déformation à rupture des fibres unitaires et ε_m la déformation à rupture de la matrice.

$$\sigma_{UD,L} = k \times V_f \times \sigma_{f,L} + (1 - V_f) \times \sigma_{fL} \times \frac{E_m}{E_{f,L}}$$

Où $\sigma_{UD,L}$ est la contrainte à rupture longitudinale calculée du matériau composite, $\sigma_{f,L}$ est la contrainte à rupture des fibres unitaires. On considère que la contrainte à rupture des fibres unitaires est constante, en réalité les valeurs sont dispersées. La valeur moyenne de contrainte à rupture des deux lots de fibres unitaires est choisie pour les calculs (926 ± 357 MPa). Ce modèle modifié introduit un facteur d'efficacité (k) qui permet de nuancer la loi des mélanges idéale dans laquelle des fibres modèles sont considérées.

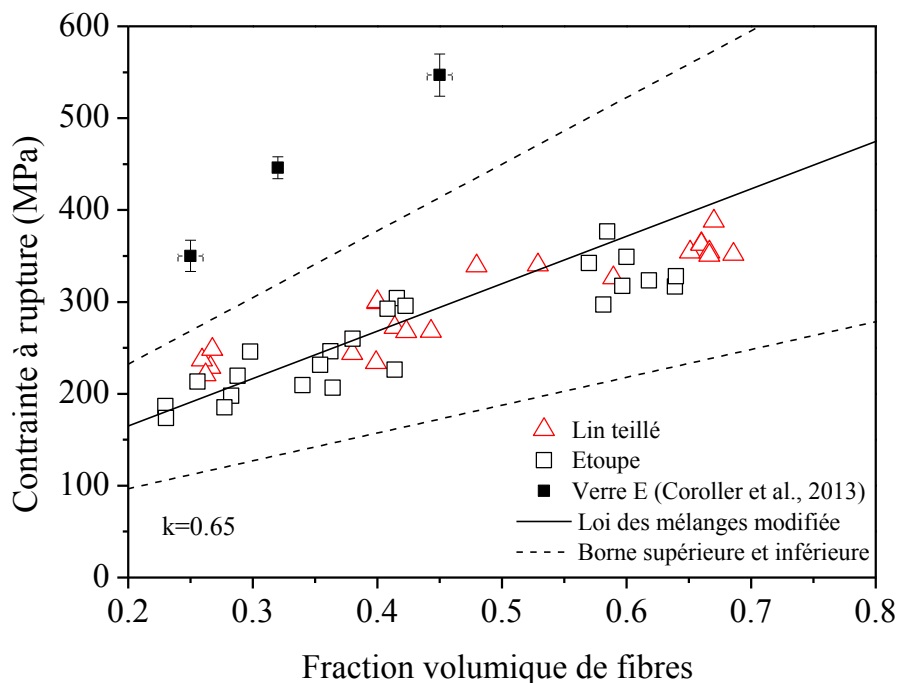


Figure 92 Contrainte à rupture en traction longitudinale des composites à renforts UD en fonction de la fraction volumique de fibres. Chaque point représente une éprouvette.

En effet, la contrainte à rupture en traction d'un composite renforcé par un renfort unidirectionnel discontinu est complexe. Les fibres unitaires de lin ont une longueur comprise entre 30 et 80 mm et sont ici groupées en faisceaux, tandis que la simple loi des mélanges fait l'hypothèse de l'utilisation de renforts individualisés et continus. De plus, la contrainte à rupture des fibres unitaires de lin est dispersée et la taille de la section polygonale varie. En outre, le degré d'individualisation des faisceaux de fibres joue un rôle prépondérant dans les propriétés de rupture des matériaux composites. Le comportement à rupture en traction n'est pas directement proportionnel à la contrainte à rupture des fibres unitaires, étant donné que les endommagements cumulés sont à prendre en compte.

De la même manière que pour le module de traction, une limite supérieure et une limite inférieure sont aussi calculées, grâce à une loi des mélanges en utilisant respectivement une valeur haute et une valeur basse de contrainte à rupture de fibre unitaire.

Une valeur k moyenne de 0,65 permet d'obtenir une bonne corrélation entre les valeurs estimées par le modèle et les points expérimentaux pour la filasse ou les étoupes. Cette valeur est proche des valeurs de k rapportées par Coroller et al., (2013).

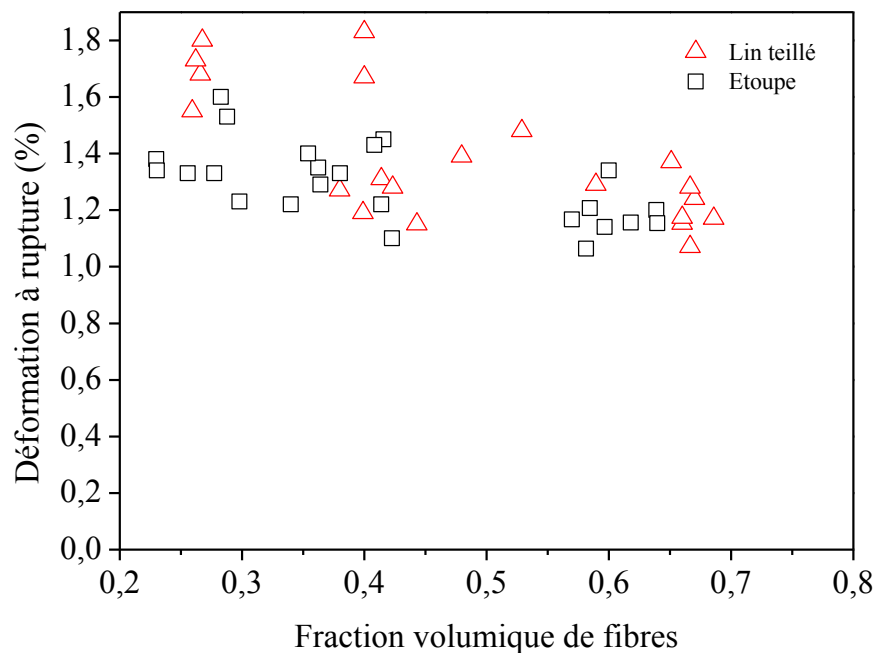


Figure 93 Déformation à rupture en traction longitudinale des composites à renforts UD en fonction de la fraction volumique de fibres. Chaque point représente une éprouvette.

Afin d'étudier l'évolution de k en fonction de la fraction volumique de fibres, la valeur de k est calculée pour chaque point expérimental (Figure 94). On note une diminution de k avec l'augmentation de la fraction volumique de fibre. Le renfort fibreux est donc moins

performant pour des taux de fibres élevés. En moyenne, la valeur de k est plus faible pour les étoupes, ce qui peut être expliqué par la section plus élevée des faisceaux d'étoupes. En complément, nos résultats sont comparés avec des données de la littérature (Coroller et al., 2013). Celles-ci sont des valeurs moyennes calculées à partir de plusieurs éprouvettes.

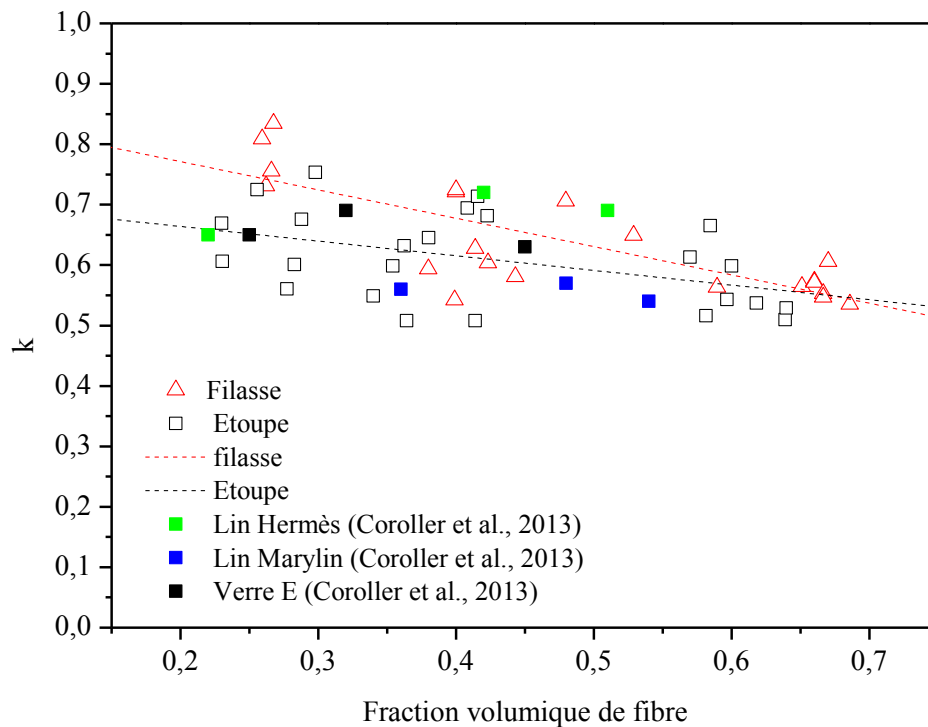


Figure 94 Evolution du facteur k en fonction de la fraction volumique de fibres pour chaque éprouvette.

Par rapport aux données de la littérature, les valeurs de k sont du même ordre de grandeur ($0,6 < k < 0,8$).

3. BILAN DU CHAPITRE IV

Lors de la production industrielle du lin, le processus de décortication donne un produit principal, la filasse et un coproduit fibreux, les étoupes. Dans ce chapitre, la présentation des fibres, les propriétés en traction des fibres unitaires et les propriétés en traction de composites unidirectionnels à matrice époxy ont été étudiés pour ces deux produits.

L'apparence visuelle entre la filasse et les étoupes diffère en raison de l'enchevêtrement des faisceaux fibreux des étoupes et la présence d'anas. Cependant, une fois

que les faisceaux d'étoupes sont alignés, la longueur des mèches des étoupes brutes et de la filasse est respectivement de 65 cm et 75 cm, ce qui montre que les faisceaux d'étoupes de lin ne sont pas courts, contrairement à ce qui a été précédemment rapporté dans la littérature. Les études morphologiques effectuées à l'échelle microscopique ont mis en évidence la plus grande finesse des faisceaux de filasse.

Les propriétés mécaniques en traction des fibres unitaires provenant de filasse et d'étoupes ne sont pas significativement différents. Les caractérisations en traction des composites epoxy/ lin UD montrent que les propriétés en traction des composites renforcés par de la filasse ou des étoupes sont dans la même gamme de valeurs pour des fractions volumiques comprises entre 0.2 et 0.7. L'utilisation des étoupes de lin ne diminue pas les propriétés mécaniques des composites.

Les valeurs expérimentales du module de traction des composites suivent les estimations de la loi des mélanges pour les deux produits. Les valeurs de contrainte à rupture suivent les estimations d'une loi des mélanges modifiée, prenant en compte l'efficacité du renfort en lin. Il s'agit d'une approche simplifiée.

Les résultats de cette étude montrent qu'il y a potentiellement un intérêt à utiliser les étoupes de lin, qui sont des coproduits, pour créer un renfort de matériau composite hautes performances après avoir utilisé un processus de nettoyage et de réalignement approprié. L'utilisation des étoupes conjointement à de la filasse permettrait de développer des renforts hautes performances à moindre coût.

Chapitre V ETUDE DE COMPOSITES A MATRICE

THERMOPLASTIQUE RENFORCES PAR DES NON-TISSES DE LIN

L'offre de renforts en fibres végétales disponibles pour la réalisation de matériaux composites est large. Par exemple, il peut s'agir de renforts unidirectionnels ou tissés à partir de rubans ou de fils de lin continus. A l'inverse, il existe également des semi-produits sous forme de compounds dont les fibres sont discontinues et mesurent quelques centaines de micromètres. Entre ces deux extrema, on trouve des renforts dit non-tissés. Ces derniers sont réalisés à partir de faisceaux de fibres d'une longueur de quelques dizaines de millimètres.

Un non-tissé est un voile de fibres continues ou discontinues consolidé par voie mécanique, thermique ou chimique. La microstructure et l'orientation des fibres du non-tissé sont intimement liées aux multiples méthodes de formation et de consolidation du voile de fibres.

Ce chapitre propose d'étudier la structure et les performances mécaniques de composites à matrice thermoplastique renforcés par trois types de non-tissés de fibres de lin. Deux non-tissés, un hydrolié et un aiguilleté, ont été réalisés aux cours des travaux de doctorat à partir du même lot de fibres de lin produit par l'entreprise Van Robaeys Frères. Le troisième type de non-tissé est un mat réalisé par voie papetière.

Les objectifs de ce chapitre sont d'évaluer le potentiel des non-tissés hydroliés de lin pour un usage comme renfort de composite, puis évaluer l'influence de la morphologie et de l'organisation des trois renforts non tissés sur les propriétés mécaniques des composites.

Dans une première partie (**Etude A, Paragraphe 2.**), les propriétés mécaniques de composites à matrice PLA (acide polylactique) et renforts hydroliés sont étudiées. Deux compositions de renfort sont utilisées : pur lin et un mélange lin / viscose.

Dans une deuxième partie (**Etude B, paragraphe 3.**), les performances de composites à matrice polypropylène réalisés à partir de trois types de préformes non tissées en fibres de lin sont évaluées. Une préforme hydroliée, une préforme aiguilletée et un mat de lin sont comparés. Dans un premier temps, l'effet d'un agent couplant associé à la matrice polymère est étudié. Par la suite, la morphologie, l'organisation des préformes et la corrélation entre propriétés des fibres et celles des composites sont étudiées.

1. MATERIAUX DE L'ETUDE

1.1. Processus de fabrication des non-tissés de lin

Dans ce paragraphe sont abordés les processus de fabrication utilisés afin de produire les préformes non-tissées pour les travaux de cette étude.

Les renforts hydroliés sont produits à l'échelle industrielle par l'entreprise Norafin GmbH (Mildenau, Allemagne). Les renforts aiguilletés sont fabriqués à l'échelle pilote au CENT (Tourcoing, France). Ces deux premiers renforts ont été réalisés dans le cadre des travaux de doctorat à partir de fibres produites par Van Robaeys Frères. Pour comparaison, les renforts type mat de lin sont fournis par l'entreprise Ahlstrom (Pont-Évêque, France). Pour chaque processus, il existe une direction machine MD, de "machine direction", correspondant à la direction de sortie de ligne, et une direction transverse machine (CD), de "cross-direction" (Figure 95).

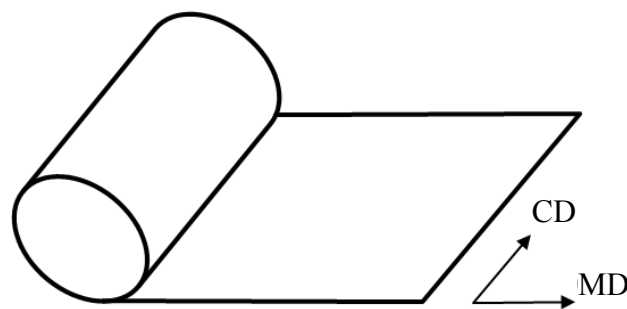


Figure 95 Définition des deux directions MD et CD par rapport au rouleau de non-tissé.

1.1.1. Non-tissé hydrolié

La fabrication consiste en la formation d'un voile par cardage puis à sa consolidation par des jets d'eau. La consolidation est nommée hydroliage. La Figure 96 est un schéma de principe de la ligne d'hydroliage utilisée. Le processus est continu depuis l'entrée jusqu'à la sortie de la matière.

Les balles de fibres sont tout d'abord chargées dans un système d'ouvraison de matière afin que les flocons de fibres soient correctement ouverts et séparés. Si un mélange de fibres est nécessaire, il est effectué après l'étape d'ouvraison. Ensuite, un système d'alimentation prépare une nappe homogène et régulière afin de réaliser le cardage dans des conditions optimales. Deux cardes montées en parallèle délivrent chacune un voile de 2,4 m de large. Les deux voiles sont ensuite superposés puis consolidés par une série de jets d'eau haute pression

(100 bars). Après consolidation, l'excédent d'eau est aspiré, puis le non-tissé est passé dans un four à flux d'air chaud (180°C). L'étape de séchage dure une dizaine de secondes. Le non-tissé est ensuite enroulé.

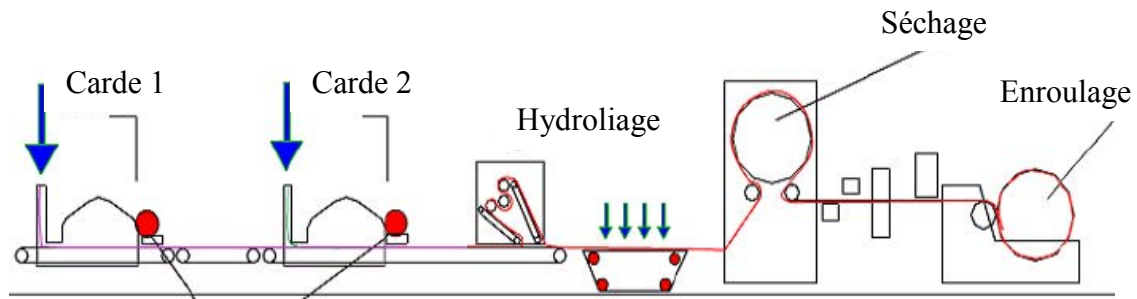


Figure 96 Schéma de principe de la ligne d'hydroliage utilisée. Adapté d'un document Norafin.

La technique d'hydroliage permet de produire des non-tissés possédant une masse surfacique de 15 à 400 g/m². Expérimentalement, des non-tissés hydroliés de lin et de chanvre de 1500g/m² ont été fabriqués Russell (2006).

L'hydroliage est utilisé avec des fibres synthétiques, coton ou viscose pour la fabrication de lingettes jetables. Il existe d'autres applications variées, de commodités ou plus techniques : des tissus semi-durables, des vêtements de protection anti feu à base d'aramide, des tissus chirurgicaux, des pansements et compresses, des systèmes de filtration, du cuir synthétique, etc. (Russell, 2006).

Les non-tissés hydroliés de lin sont utilisés pour le secteur du bâtiment en tant que revêtements muraux, écrans de sous toiture ou stores (Maity et al., 2014). Des applications existent également pour les arts de la table ou pour des supports de communication. Le coût de revient d'un non tissé hydrolié 80 g/m² est estimé à 6 €/kg.

1.1.2. Non-tissé aiguilleté

La fabrication consiste en la formation d'un voile puis à sa consolidation par la traversée d'aiguilles. De la même manière que pour la réalisation des hydroliés, les flocons de fibres doivent être préparés et ouverts avant cardage.

La Figure 97 est un schéma de principe de la ligne d'aiguilletage utilisée. Un voile d'un mètre de largeur est produit par cardage, puis plusieurs couches sont superposées à l'aide d'un étaleur-nappeur. La direction de sortie du voile nappé est perpendiculaire à la direction de sortie de la carde. Le voile nappé est consolidé par un champ d'aiguilles le traversant de part en part à raison de 900 coups/min. Le non tissé est ensuite enroulé en sortie de ligne.

Il est important de noter que la direction de sortie de carde ne correspond pas à la direction de sortie du rouleau de non tissé, mais forme un angle proche de 90°.

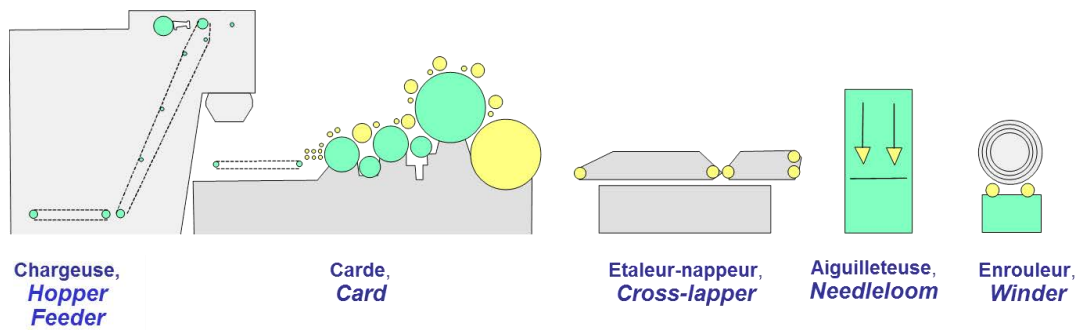


Figure 97 Schéma de principe de la ligne d'aiguilletage utilisée. Adapté d'un document du CENT.

La technique d'aiguilletage permet de produire des non-tissés avec une masse surfacique de 200 à 4000 g/m².

Les applications courantes des aiguilletés de fibres synthétiques ou végétales sont : les géotextiles, des systèmes de filtration, des revêtements de sols, des textiles d'habillement, des revêtements intérieurs pour l'automobile, des isolants thermiques, des couvertures, des lingettes, etc. Des semi-produits à destination des composites sont fabriqués par aiguilletage. Ces préformes associent des fibres végétales mélangées à des fibres de thermoplastique. Elles sont destinées à une mise en forme par thermocompression (Fages et al., 2012; Mieck et al., 1996). Le coût de revient d'un non tissé aiguilleté 200 g.m⁻² est estimé à 5 €/kg.

1.1.3. Mat réalisés par voie papetière

La méthode de production exacte utilisée est un savoir-faire du fournisseur et n'est pas communiquée. Les mats sont réalisés à l'aide d'un processus non-tissé dérivé du procédé papetier : le processus voie humide ou *wetlaid* (Figure 98). D'après deux ouvrages de référence (Payen, 2013; Russell, 2006), quelques points du processus sont abordés ci-après.

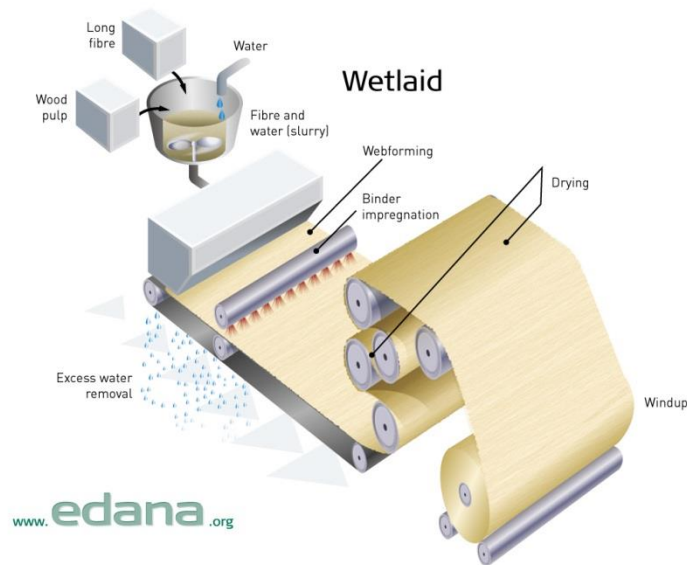


Figure 98 Exemple de ligne de production par voie humide (EDANA, 2014).

Les fibres coupées (10 mm) sont tout d'abord dispersées, puis diluées dans une grande quantité d'eau à une concentration relativement faible de l'ordre de 0,2 % de matière sèche. Cette pâte est transférée sur une toile afin de former un matelas fibreux, puis celui-ci est égoutté, essoré et enroulé. La vitesse de production n'est pas connue mais peut être supérieure à 500 m/min pour ce type de processus. La cohésion de la matière est uniquement assurée par des interactions physiques faibles entre fibres, de type liaison hydrogène.

1.2. Matériaux utilisés pour Etude A

Dans cette première étude, deux types de renforts hydroliés ont été utilisés. Le premier est constitué d'un mélange lin/viscose en proportion massique 65/35 et possède une masse surfacique de 130 g.m^{-2} . Le second est constitué de 100 % de lin et possède une masse surfacique de 150 g.m^{-2} .

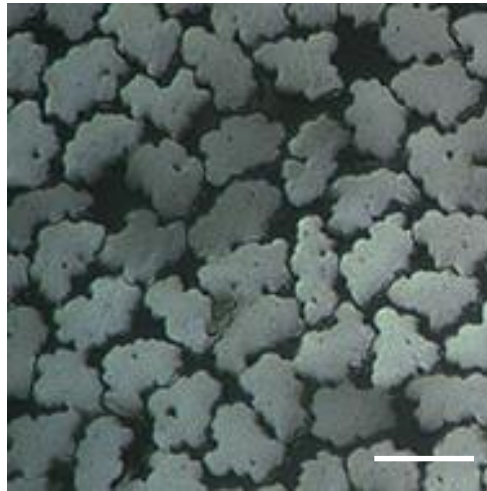


Figure 99 Vue en coupe de fibres de viscose mettant en évidence la forme nuageuse de leurs sections.
Barre d'échelle : 15 μm . (Photo : Lenzing).

Les fibres de viscose utilisées sont fournies par Lenzing sous la référence 1.7 dtex 40 mm dull Nonwovens. Elles possèdent une longueur de 40 mm et un titre de 1,7 dtex. Ces fibres possèdent une section en forme de nuage (Figure 99). Ce sont des filaments individuels d'un diamètre d'environ 12 μm .

La matrice thermoplastique utilisée est le PLA (acide polylactique) référence Ingeo 7001D de NatureWorks. Avant mise en œuvre des composites par thermocompression (cf. chapitre II), les renforts et la matrice sont conservés à une température de 50°C pendant 12h. Les proportions de constituants sont pesées afin d'obtenir une fraction massique de fibres cible de 35 %, soit une fraction volumique de 31 %.

1.3. Matériaux utilisés pour Etude B

Pour cette deuxième étude, trois types de renforts en fibres de lin sont utilisés. Il s'agit d'un hydrolié, d'un aiguilleté et d'un mat. Les renforts sont uniquement constitués de fibres de lin. Les fibres utilisées pour la réalisation de la préforme aiguilletée et de la préforme hydroliée proviennent du même lot de filasse. Il s'agit de la variété de lin Suzanne, cultivée dans le secteur d'Hesdin (Pas-De-Calais) en 2009. Après récolte, les pailles ont été teillées par la société Van Robaeys Frères afin d'en extraire les fibres. Après teillage, la filasse est coupée à une longueur de 40 mm, à l'aide d'une machine de coupe rotative puis affinée par passage dans deux tambours d'affinage de marque Laroche. Il s'agit donc de fibres teillées, coupées et affinées. Ces faisceaux de fibres possèdent un diamètre moyen de 36 μm et une longueur moyenne de 38 mm. Le rapport d'aspect de ces fibres est évalué à environ 1000.

Le mat de lin utilisé est fourni par la société Alshtröm. Les fibres proviennent de lin teillé, peigné, coupé à une longueur de 10 mm, puis mis en œuvre par une technique papetière. Les fibres utilisées pour la réalisation de ce matériau ont été préalablement caractérisées par traction de fibres unitaires (Roussière et al., 2012).

Pour cette seconde étude, le renfort hydrolié possède une masse surfacique de 80 g.m^{-2} . Le renfort aiguilleté possède une masse surfacique de 200 g.m^{-2} . Le mat possède une masse surfacique de 100 g.m^{-2} .

La matrice thermoplastique utilisée est le polypropylène (PP) référence PPC 10642 fourni par Total Petrochemicals. Afin d'améliorer la compatibilité entre le PP et les renforts, 4 % en masse d'un agent comptabilisant est ajouté à la matrice PP. Ce composé est fourni par Arkema sous la référence Orevac CA100. Il est composé de polypropylène sur lequel est greffé de l'anhydride maléique (PPgMA).

Les renforts ne sont pas étuvés avant mise en œuvre par thermocompression (cf. Chapitre II).

2. ETUDE A : COMPOSITES A MATRICES PLA RENFORCES PAR DES RENFORT HYDROLIES EN LIN ET LIN/VISCOSE

L'objectif de cette première étude est d'évaluer le potentiel de préformes hydroliées en fibres végétales pour la fabrication de biocomposites. Deux types de renforts hydroliés ont été comparés. Le premier est constitué de lin et possède une masse surfacique de 150 g.m^{-2} . Le second est constitué d'un mélange lin/viscose en proportion massique 65/35 et possède une masse surfacique de 130 g.m^{-2} . Les composites sont mis en œuvre par thermocompression avec une matrice PLA. Cette étude vise à comparer la morphologie et la capacité de renforcement de polymère pour ces deux types de renfort.

Le mélange des fibres de lin avec des fibres de viscose se justifie par une recherche de productivité. L'ajout de viscose aux fibres de lin permet d'améliorer l'efficacité du cardage et d'obtenir un compromis entre l'utilisation des fibres de lin et un rendement de production acceptable d'un point de vue économique.

2.1. Observation de la microstructure des renforts et des composites

La Figure 100 présente deux images issues d'observations MEB des deux renforts. La direction (MD) correspond au sens machine. Les deux produits possèdent une structure identique.

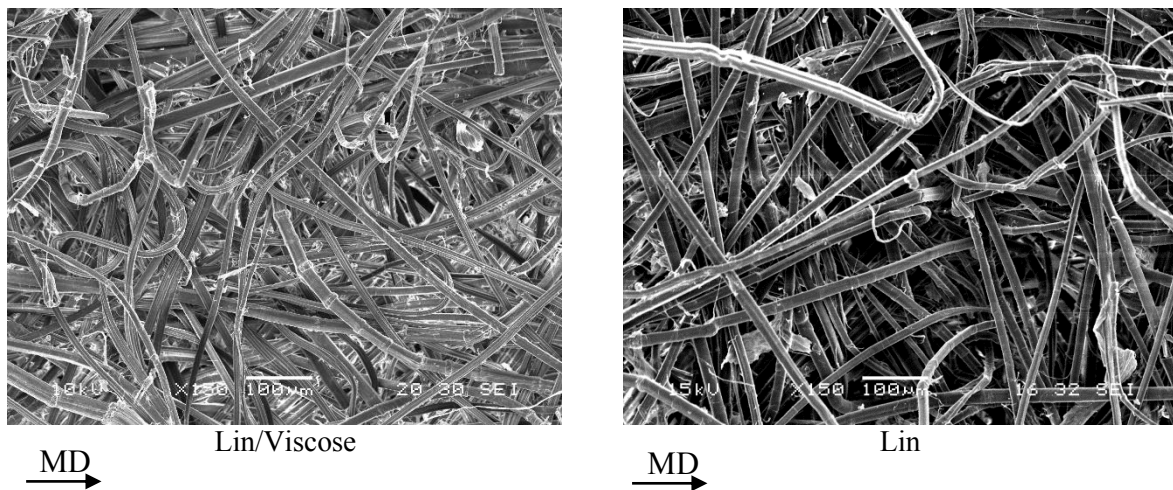


Figure 100 Observations MEB des deux renforts hydroliés.
a) 130 g.m⁻² Lin/Viscose 65/35. b) 150 g.m⁻² Lin.

Les fibres sont bien individualisées. Le cardage et l'action des jets d'eau à haute pression ont permis de diviser les faisceaux fibreux. Par contre les fibres sont très enchevêtrées et courbées. Par endroit, des boucles sont visibles (Figure 100). On ne distingue pas d'orientation préférentielle dans le renfort à cette échelle d'observation.

Des observations de coupes de matériaux composites ont été effectuées afin d'étudier la microstructure des deux matériaux (Figure 101). Au vu des observations MEB, les matériaux présentent une très faible porosité. Quelques vides et arrachements de fibres sont constatés mais peuvent être dus à la préparation des échantillons par polissage. Les renforts sont bien répartis au sein du composite, il n'y a pas de zones plus riches en matrice. Les fibres de viscose sont repérables à la forme nuageuse de leur section. Celles-ci sont réparties de façon homogène, témoignant d'un mélange intime entre le lin et la viscose. Au vu des observations MEB, les fibres semblent être orientées majoritairement dans la direction d'observation MD avec quelques fibres orientées dans la direction CD. Cependant ces observations sont réalisées sur une zone limitée de l'échantillon et ne permettent pas de déterminer l'orientation générale des fibres.

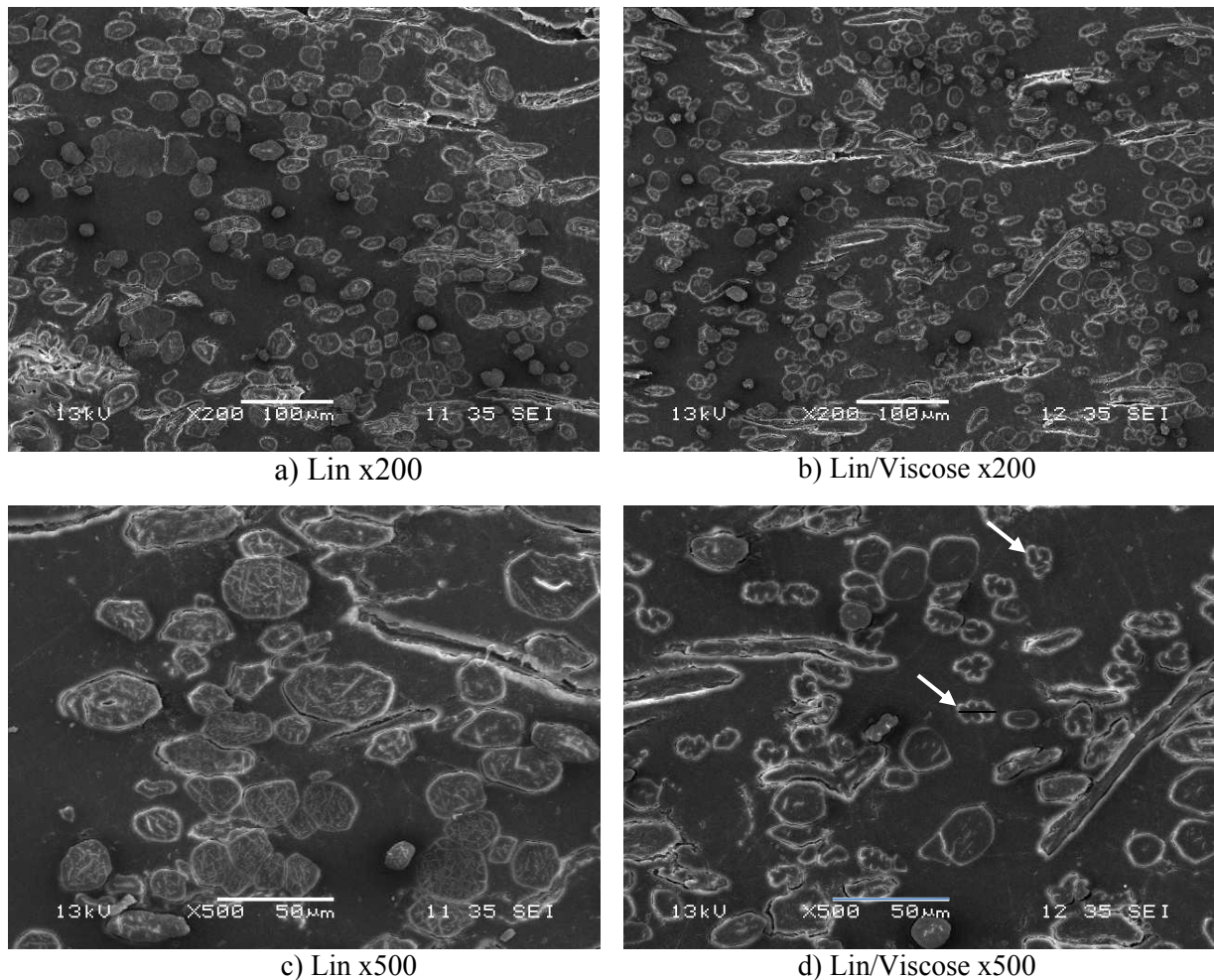


Figure 101 Observation MEB d'une coupe de matériaux composites dans la direction MD du renfort. a) et c) 100% Lin. b) et d) Lin Viscose 65/35. Les flèches blanches indiquent les fibres de viscose.

Etant donné le manque d'organisation observé sur la préforme sèche (Figure 100), il est difficile de conclure sur une orientation particulière des fibres. Ce point sera abordé lors de l'analyse des propriétés mécaniques.

2.2. Comparaison des propriétés mécaniques en traction des composites réalisés à partir des deux types de renforts hydroliés.

Les essais sont réalisés sur des éprouvettes haltères de faibles dimensions ($100 \times 7 \times 2 \text{ mm}^3$).

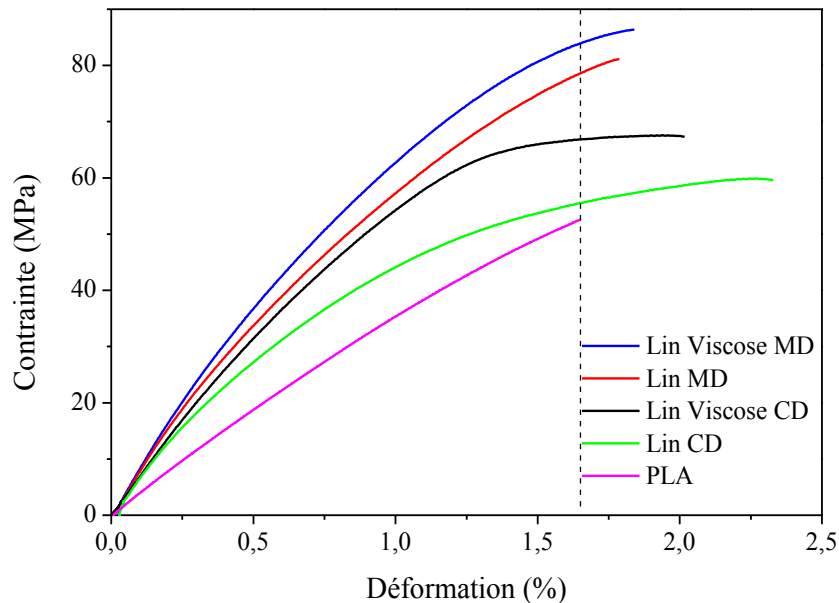


Figure 102 Courbe de comportement en traction de la matrice PLA et des composites Lin/Viscose/PLA et Lin/ PLA dans les directions MD et CD des renforts

La Figure 102 montre le comportement en traction de la matrice PLA et des composites Lin/Viscose/PLA et Lin/ PLA dans les directions MD et CD des renforts. On note un comportement fragile de la matrice PLA. L'allure des courbes est semblable pour les deux matériaux sollicités dans les deux directions des renforts. Le comportement des matériaux est linéaire en pied de courbe et correspond à la réponse élastique du matériau. Puis à partir d'un seuil, le comportement est non linéaire. La diminution du module sécant s'accroît jusqu'à la rupture de l'éprouvette. Les mécanismes d'endommagement de composites à renfort hydrolié n'ont pas été étudiés dans la littérature, cependant leur comportement en traction (Figure 102) est similaire à celui d'un composite mat de verre/résine polyester (Baley et al., 2006c; Bodros et al., 2007). Le seuil de non linéarité correspond au premier endommagement, probablement par une initiation de fissures à l'interface fibre/matrice et/ou au sein d'un faisceau orienté de manière transverse à la sollicitation de traction. On note que la présence de fibres de forme curviligne complexifie la description du comportement mécanique des hydroliés.

La Figure 103 présente les faciès de rupture après traction des éprouvettes. Les faciès montrent une rupture plutôt fragile. On retrouve quelques faisceaux pour le renfort pur lin (Figure 103 a). Les mécanismes d'endommagement sont multiples. On peut observer des déchaussements de fibres orientées hors de l'axe de sollicitation. Le PLA présente un comportement fragile (Figure 102) et la rupture des composites a pu intervenir par fissuration de la matrice avant rupture des fibres.

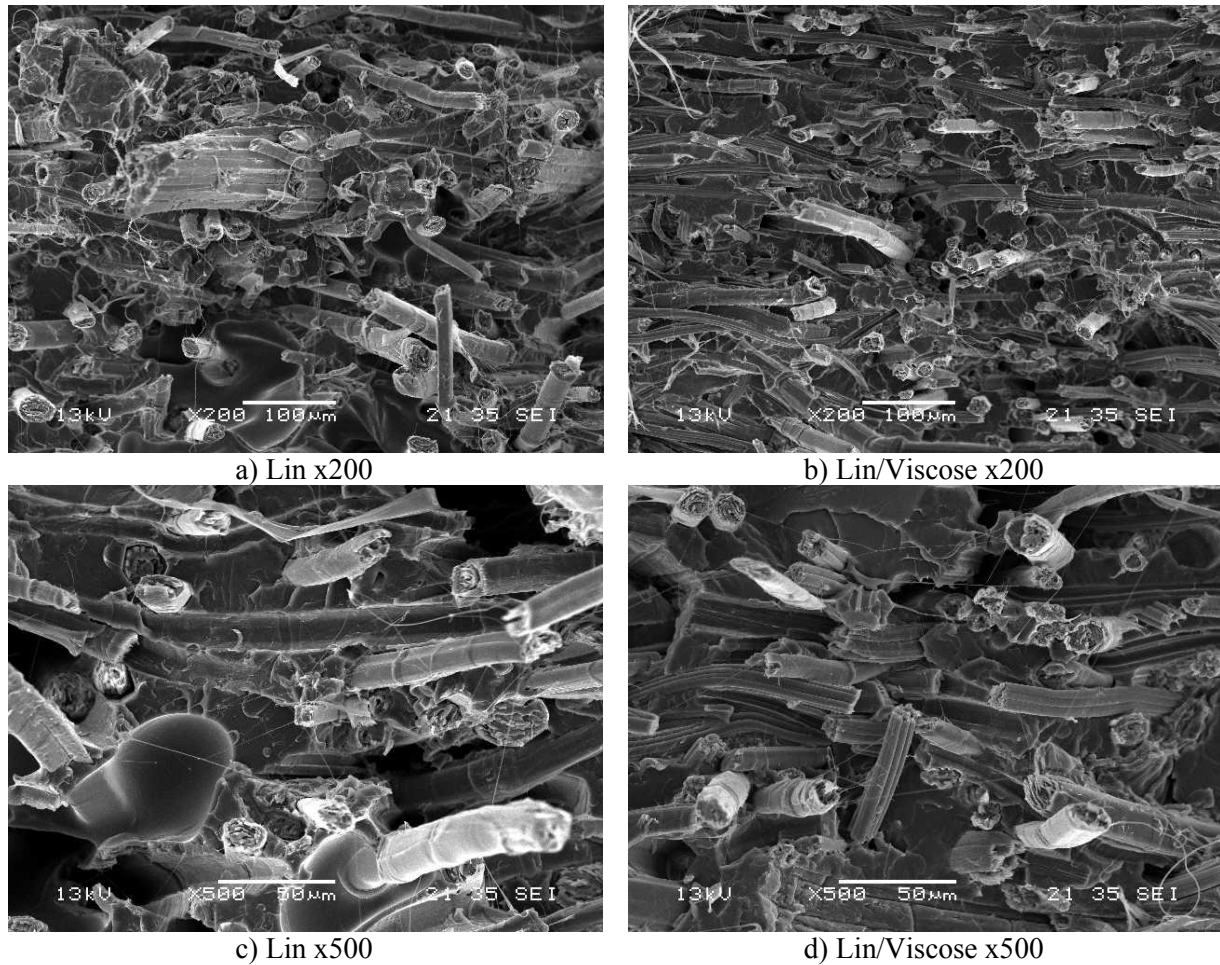


Figure 103 Faciès de rupture des composites Lin/PLA et Lin/Viscose/PLA sollicités en traction dans le sens longitudinal

Ces longueurs de déchaussements ne traduisent pas forcément une faible adhérence fibre/matrice. Le Duigou et al (2010) ont montré grâce à des essais de déchaussements de microgouttes, que la contrainte de cisaillement apparente du système lin/PLA (Le Duigou et al., 2010) était équivalente à celle du système verre/polyester.

Le Tableau 27 présente les propriétés mécaniques en traction des composites Lin / PLA et Lin/Viscose / PLA. On constate une augmentation du module d'Young et de la contrainte maximale par rapport au PLA vierge, ce qui traduit un mécanisme de renforcement du polymère par les fibres. L'augmentation de la contrainte maximale est réduite par rapport à l'augmentation du module d'Young. La déformation à rupture augmente légèrement par rapport au PLA vierge dans les deux directions MD et CD des renforts. Le comportement du PLA est plutôt fragile et sa déformation est relativement faible, du moins inférieure à celles des fibres de lin, ce qui pénalise la capacité de déformation du composite et limite sa

résistance à rupture. Les propriétés mécaniques en traction mesurées pour les deux types de renforts sont similaires malgré l'ajout de viscose.

Matériaux	$V_f(\%)$	Module d'Young (MPa)	Contrainte maximale (MPa)	Déformation à la rupture (%)
PLA vierge	0	3925 ± 183	$53,3 \pm 3,3$	$1,7 \pm 0,2$
Lin / PLA MD	31,1	7687 ± 507	$80,33 \pm 4,56$	$1,8 \pm 0,1$
Lin / PLA CD	33,6	6524 ± 146	$62,0 \pm 2,1$	$2,3 \pm 0,2$
Lin Viscose / PLA MD	31,7	7925 ± 171	$83,7 \pm 2,4$	$1,8 \pm 0,1$
Lin Viscose / PLA CD	31,1	6741 ± 125	$67,3 \pm 1,9$	$2 \pm 0,2$

Tableau 27 Propriétés mécaniques en traction des composites Lin / PLA et Lin Viscose / PLA

L'analyse des propriétés mécaniques en traction en fonction de la direction de sollicitation montre une anisotropie des renforts. Le module d'Young et la contrainte maximale sont plus élevés dans le sens machine MD (Tableau 27). L'étape de cardage, pendant laquelle les fibres sont alignées et individualisées, oriente préférentiellement les fibres dans le sens machine. Cet aspect peut expliquer l'anisotropie de propriétés mécaniques. Les propriétés mécaniques des fibres de viscose varient selon les données de la littérature (Ganster et Fink, 2006; Lenz et al., 1993; Woodings, 2001). Elles sont dans tous les cas plus faibles que les propriétés mécaniques des fibres unitaires de lin. Les données varient autour 200-300 MPa pour la contrainte à rupture, 10 GPa pour le module d'Young et 25% pour la déformation à rupture. Cependant, l'ajout de viscose ne provoque pas de diminution des propriétés mécaniques des composites. L'orientation des fibres dans le plan, la finesse et l'individualisation des fibres de viscose peuvent expliquer l'absence de diminution des propriétés mécaniques des composites.

Matériaux	V _r (%)		Module d'Young (MPa)	Contrainte maximale (MPa)	Déformation à la rupture (%)
Lyocell/PLA (Graupner et al., 2009)	35,5	MD	6784 ± 523	81,8, ± 6,6	4,09 ± 0,8
		CD	4721 ± 529	31,9 ± 6,0	1,25 ± 0,4
Mat de lin /PLA (Bodros et al., 2007)	26,2		8856 ± 297	81,3 ± 2,8	1,2 ± 0,1
Mat de lin /PLA (Le Duigou, 2010)	26,5		9524 ± 122	89 ± 2	1,2 ± 0,1
Mat de lin /PLA (Roussière et al., 2012)	34,1		8400 ± 477	84,2 ± 1,3	1,70 ± 0,15

Tableau 28 Propriétés en traction de composites Lin/PLA issues de la littérature. Mise en œuvre par thermocompression.

D'autres matériaux intégrant des fibres de lin ou de viscose et une matrice PLA ont été étudiés dans la littérature (Tableau 28). Graupner et al (2009) ont mis en évidence une anisotropie de propriétés mécaniques pour des composites fibres cellulosiques /PLA préparés par cardage des fibres et mis en œuvre par thermocompression. En comparaison avec les données de la littérature, les matériaux évalués dans cette étude possèdent des propriétés mécaniques équivalentes à celles de composites à renfort mat de lin et matrice PLA (Bodros et al., 2007; Le Duigou, 2010; Roussière et al., 2012).

2.3. Bilan de l'étude A

Les propriétés mécaniques des composites à matrice PLA et renforts hydroliés (de lin et lin/viscose) mis en œuvre par thermocompression ont été étudiés.

Les deux renforts possèdent une structure similaire. Les fibres sont individualisées, on distingue peu de faisceaux, par contre celles-ci sont enchevêtrées et courbées.

Les matériaux composites réalisés par thermocompression présentent une bonne santé matière. Leur comportement mécanique en traction est non linéaire et semblable à celui d'un composite mat de verre/polyester. La matrice PLA, fragile, limite la capacité de déformation des deux matériaux. On note une anisotropie du comportement mécanique en traction entre la direction CD et la direction MD. L'ajout de viscose aux fibres de lin ne provoque pas d'abaissement des propriétés mécaniques. Les matériaux composites réalisés possèdent des propriétés mécaniques identiques à d'autres matériaux à renfort en lin ou fibres cellulosiques régénérées.

Dans cette première étude, les propriétés mécaniques de deux types de renforts hydroliés ont été étudiées. Dans l'étude qui suit, les propriétés mécaniques de composites réalisés à partir de trois architectures différentes de renforts non-tissés sont abordées.

3. ETUDE B : EVALUATION DU POTENTIEL DE TROIS RENFORTS NON TISSES DE LIN : HYDROLIE, AIGUILLETE, MAT PAPETIER

L'objectif de cette deuxième partie est d'étudier l'influence de la structure d'un renfort non-tissé de lin sur les propriétés mécaniques de composites à matrice polypropylène. Trois renforts sont étudiés : un hydrolié, un aiguilleté et un mat papetier. Les composites ont été mis en œuvre par thermocompression comme décrit dans le chapitre II. Quatre fractions massiques de fibres cibles sont étudiées : 20, 30, 40 et 50 %.

La matrice utilisée est un polypropylène auquel est ajouté 4% d'un agent comptabilisant PPgMA. Cette fraction de PPgMA permet d'obtenir des résultats optimaux sur des composites Lin/PP injectés (Arbelaiz et al., 2006, 2005b; Ausias et al., 2013).

Tout d'abord, la structure et la morphologie des renforts sont étudiées. Ensuite, l'influence des processus de mise en œuvre des renforts sur les propriétés mécaniques des fibres est étudiée. Puis l'influence de la présence d'un agent couplant (PPgMA) sur les propriétés mécaniques des composites est étudiée. Les propriétés mécaniques des matériaux composites sont ensuite déterminées par traction, dans la direction du rouleau de renfort MD et dans la direction transverse au rouleau de renfort CD. Enfin, les valeurs expérimentales de rigidité sont comparées avec des valeurs générées à partir de modèles micromécaniques.

3.1. Etude de la structure des renforts non tissés.

La morphologie des faisceaux de fibres issus des trois non-tissés est estimée en mesurant la longueur moyenne et le diamètre moyen apparents d'environ 200 faisceaux (Tableau 29). Les renforts aiguilletés et hydroliés possèdent un rapport d'aspect d'environ 1000 par rapport au mat dont le rapport d'aspect est de 200. Ce résultat s'explique par la longueur initiale des fibres utilisées pour la réalisation du mat (10 mm), alors que pour les hydroliés et les aiguilletés, la longueur initiale des fibres est de 40 mm.

Renfort	Longueur (mm)	Diamètre (μm)	Rapport d'aspect L/d
Hydrolié	~25	25 ± 14	~1000
Aiguilleté	~40	38 ± 28	~1000
Mat	~10	51 ± 49	~200

Tableau 29 Morphologie des fibres des trois non-tissés

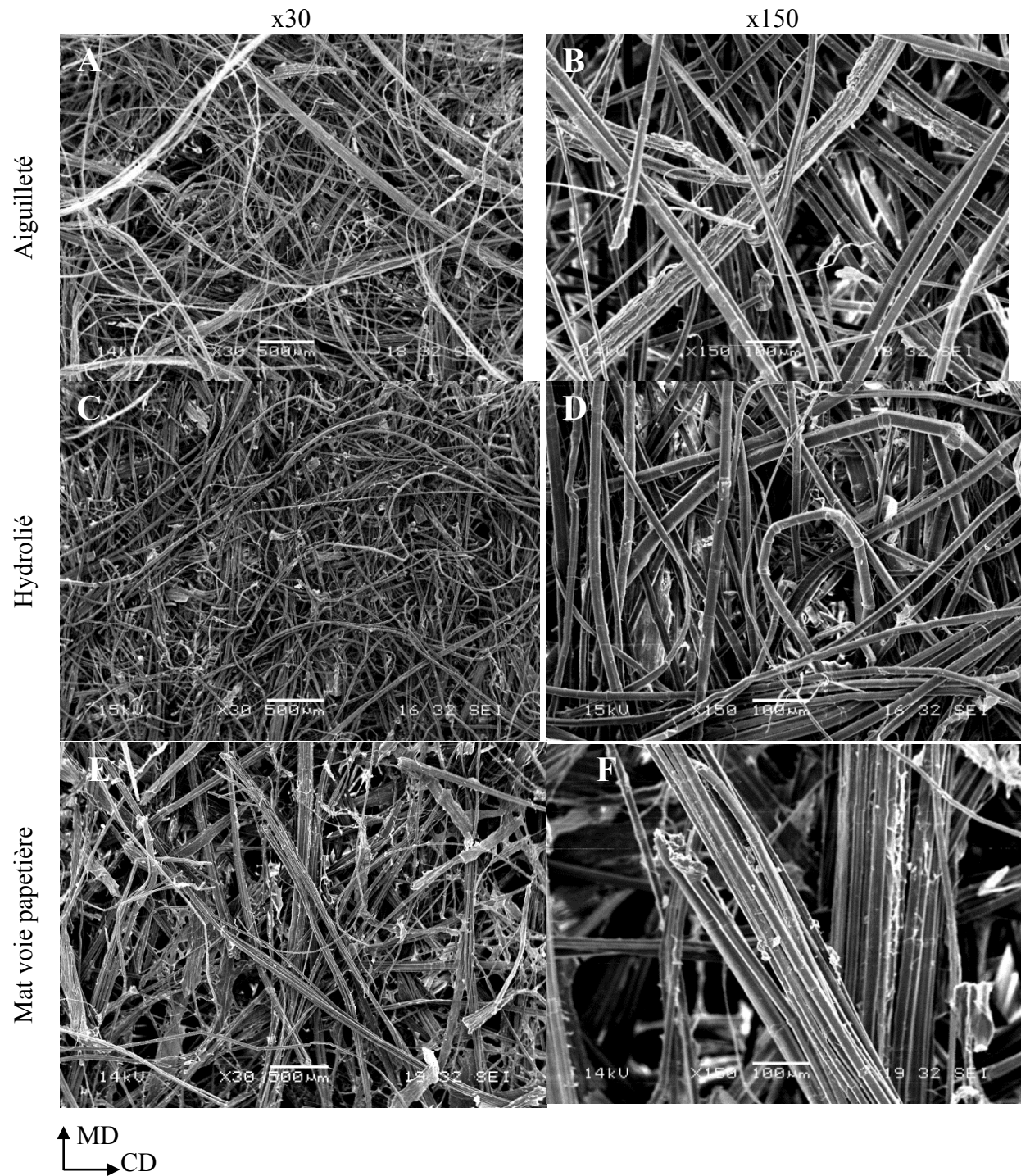


Figure 104 Observations par MEB de la surface des non-tissés. A et B : aiguilleté, C et D : hydrolié, E et F : Mat

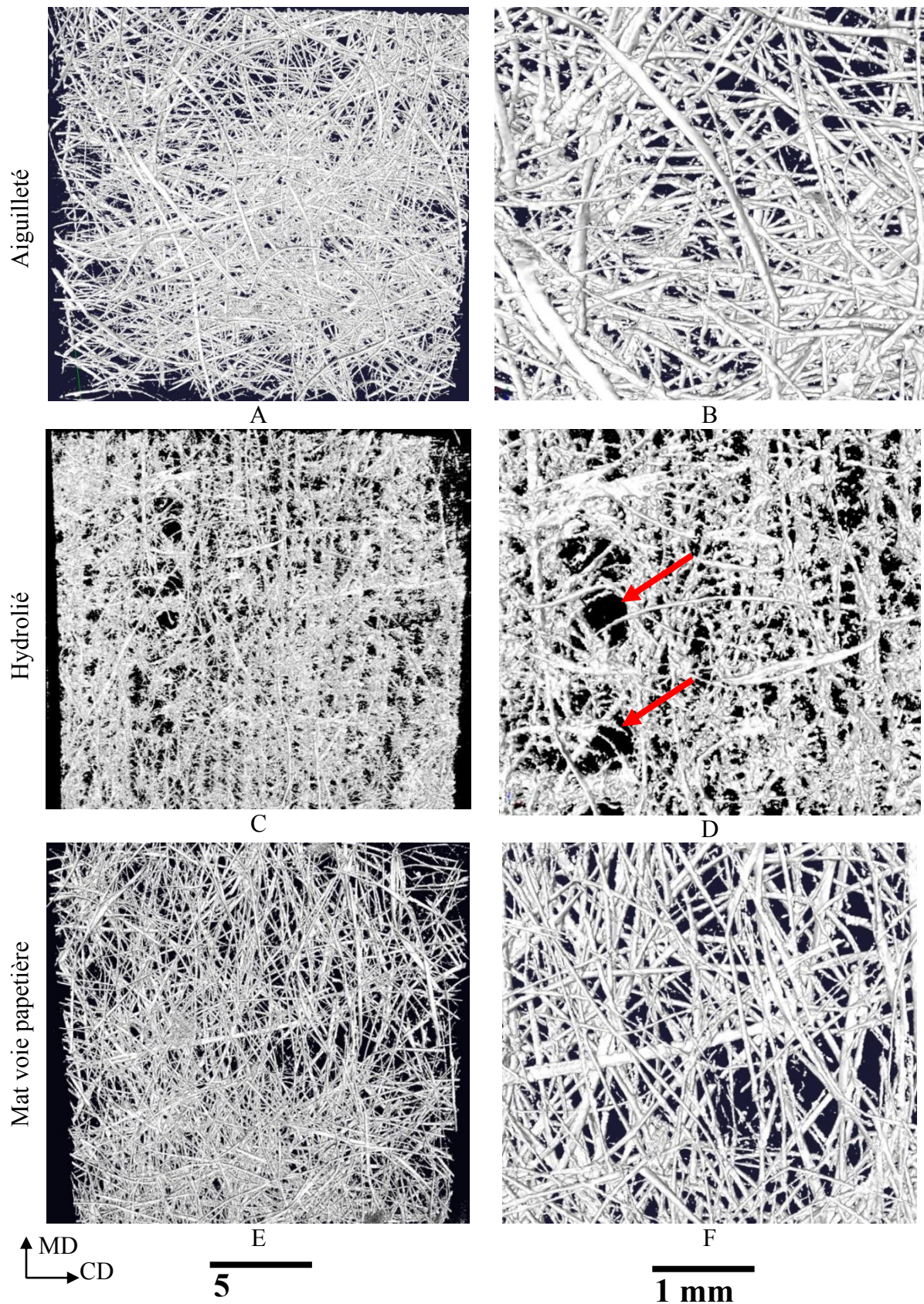


Figure 105 Reconstitution 3D des renforts à partir des données de tomographie. A et B : aiguilleté, C et D : hydrolié, E et F : Mat. Les échelles indiquées correspondent à chaque colonne. Les flèches rouges indiquent les trous provoqués par la technique d'hydroliage.

La microstructure des non-tissés a été étudiée par MEB et Tomographie à Rayons-X afin d'observer l'organisation et la distribution des fibres au sein des renforts. La Figure 104 présente des observations MEB de la surface des trois renforts et la Figure 105 regroupe les images 3D des renforts reconstituées à partir des données de tomographie.

Pour l'aiguilleté, les fibres sont sous forme de faisceaux (Figure 105 A et B). L'orientation est plutôt aléatoire. Il n'est pas possible d'observer d'orientation préférentielle des fibres à cette échelle. Les fibres ne sont pas rectilignes mais légèrement courbées.

Les fibres du renfort hydrolié sont très individualisées (Figure 104 C et D), il subsiste quelques faisceaux. Les fibres sont par contre très enchevêtrées. On peut observer des boucles. Pour le renfort hydrolié, la résolution de l'analyse par tomographie est trop faible (25 μm par pixel) pour observer les fibres unitaires visibles au MEB. Une grande partie du volume de l'image est bruitée. Seuls quelques faisceaux sont visibles. Il y a de nombreux trous dans le non-tissé, correspondants aux empreintes des jets d'eau. Ces trous sont aussi visibles à l'œil nu et forment des stries à la surface du non-tissé. Les fibres semblent se tasser au bord des trous. Il est difficile d'observer un sens machine des fibres. Le bref passage des jets d'eau a permis d'individualiser les fibres grâce à la pression, et permet un lessivage de la surface des fibres en supprimant les résidus d'écorce.

Le mat possède des fibres plutôt rectilignes sous forme de faisceaux (Figure 105 E et F). Les faisceaux sont disposés à la manière de "bâton de mikado". Il y a très peu de fibres courbées. Les images issues de l'analyse par tomographie montrent une légère orientation des renforts dans le sens MD. Cependant, il n'est pas possible de quantifier cette orientation sur les photos. Par endroit les fibres semblent être recouvertes d'une couche superficielle, cette couche crée des jonctions entre faisceaux tel un liant. Elle pourrait résulter de la fabrication par voie papetière.

La Figure 106 montre des observations au MEB de la tranche des renforts sec orientés suivant la direction MD. Dans les trois cas, aucune fibre n'est observée dans l'épaisseur des renforts. La structure de ces non-tissés est donc principalement 2D. De par la méthode de fabrication par voie papetière, le mat possède une structure dans le plan.

Dans le cas des renforts aiguilletés le voile de fibres est consolidé par des aiguilles traversant le voile, entraînant potentiellement des fibres hors du plan. La présence de fibres dans la troisième dimension est possible, cependant celles-ci restent minoritaires par rapport à l'orientation générale des fibres dans le plan. Pour les hydroliés, les jets d'eau compactent la matière en enchevêtrant les fibres, mais sans donner réellement une structure 3D au renfort.

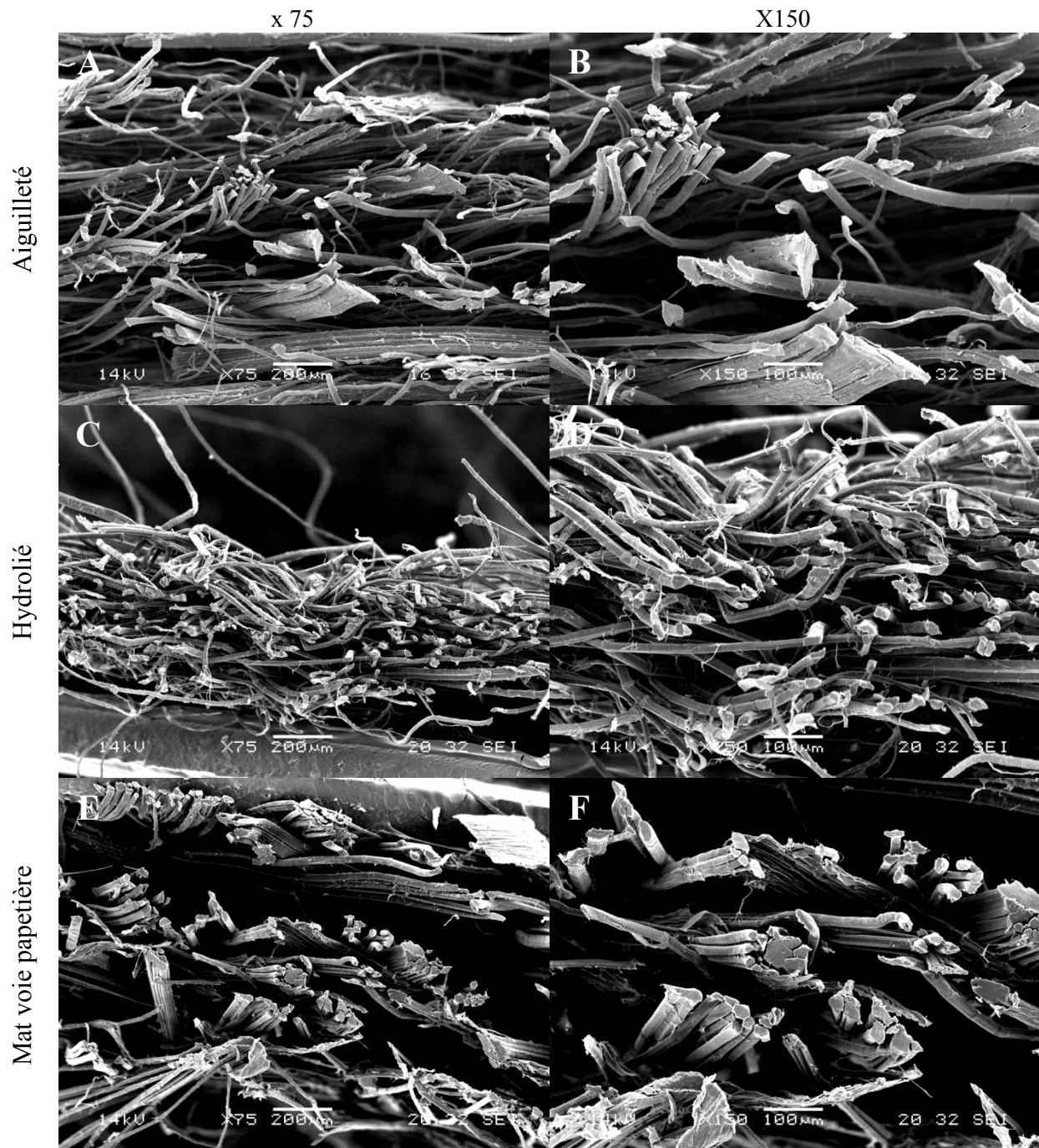


Figure 106 Observations au MEB de la tranche des non-tissés dans la direction MD.
A et B : Aiguilleté, C et D : Hydrolié, E et F : Mat.

3.2. Influence des processus de fabrication des non-tissés sur les propriétés des fibres élémentaires

Dans cette partie, les propriétés mécaniques de fibres issues des non-tissés sont mesurées par essai de traction sur fibres élémentaires, afin d'étudier l'influence des processus de transformation des préformes. Les essais sont réalisés sur les fibres affinées de la variété

Suzanne 2009, puis sur les mêmes fibres après cardage et hydroliage, et après cardage et aiguilletage.

La longueur libre des éprouvettes de traction est de 10 mm. Pour le mat, il n'est pas possible de mesurer les propriétés des fibres unitaires étant donné la longueur de coupe des fibres (10 mm). Néanmoins, le lot de fibres utilisé pour la réalisation du mat a été caractérisé précédemment par Roussière et al. (2012). Il s'agit de la variété Alizée cultivée en Basse Normandie en 2007. Les propriétés mesurées proviennent d'essais de traction effectués sur des fibres prélevées avant mise en œuvre du mat par voie papetière. Ce ne sont donc pas les propriétés effectives des fibres unitaires du mat non-tissé.

La détermination des propriétés mécaniques des fibres unitaires permet, par la suite, d'utiliser ces données dans des modèles micromécaniques.

Lot	N	$\phi_{\text{traction}} (\mu\text{m})$	E (GPa)	σ (MPa)	ε (%)
Fibres affinées Suzanne 2009	53	$15,23 \pm 2,8$	58 ± 15	1048 ± 384	$2,0 \pm 0,6$
Hydrolié Suzanne 2009	59	$15,9 \pm 3,3$	51 ± 15	916 ± 347	$1,9 \pm 0,5$
Aiguilleté Suzanne 2009	54	$15,5 \pm 2,9$	52 ± 13	932 ± 356	$1,9 \pm 0,4$
Alizée 2007 (Mat) (Roussière et al., 2012)	54	$15,28 \pm 1,5$	48 ± 18	1062 ± 432	$2,3 \pm 0,8$
(Baley et Bourmaud, 2014)	2954	16,8	52	945	2,1

Tableau 30 Propriétés moyennes en traction des fibres unitaires de lin. N : nombre de fibres de l'échantillon. Comparaison avec les propriétés moyennes rapportées par (Baley et Bourmaud, 2014).

Les propriétés mécaniques des fibres affinées Suzanne sont comprises dans la gamme de valeurs rapportées dans la littérature. Elles sont supérieures à la moyenne définie par Baley et Bourmaud, (2014) à partir des données issues de 50 lots de fibres de lin. Il est important de rappeler que ces fibres ont subi une étape de découpe ainsi qu'une étape d'affinage par deux passages en tambour d'affinage, mais conservent des propriétés mécaniques relativement élevées. L'étape d'hydroliage entraîne une faible diminution des propriétés des fibres (Tableau 30). Les valeurs de module d'Young (E) sont significativement différentes ($p < 0.05$), la diminution du module d'Young est de 12 %. Les valeurs de contraintes à rupture (σ) et de déformation à rupture (ε) ne sont pas significativement différentes ($p < 0.05$). Le même résultat est observé pour les propriétés mécaniques des fibres après aiguilletage.

Lors de l'hydroliage, les fibres sont cardées, puis le voile est consolidé par des jets d'eau haute pression (jusqu'à 100 bars) et enfin séché immédiatement après par de l'air chaud soufflé à travers le non-tissé (180°C). Néanmoins, la chute de propriétés mécaniques est limitée malgré le cardage, l'hydroliage et le séchage.

3.3. Influence de l'ajout d'un agent couplant PPgMA à la matrice PP sur les propriétés mécaniques des composites

L'objectif présent est d'évaluer l'efficacité de l'ajout de PPgMA à la matrice PP à hauteur de 4% en masse, dans les conditions de mise en œuvre utilisées ici. Dans ce but, les propriétés de composites à matrice PP avec et sans ajout de PPgMA sont comparées. Le renfort hydrolié est choisi pour effectuer cette comparaison.

L'utilisation de polypropylène (PP) sur lequel est greffé de l'anhydride maléique (PPgMA) permet d'améliorer les performances mécaniques des matériaux composites renforcés par des fibres végétales en améliorant l'adhérence fibre/ matrice (Awal et al., 2011; Mieck et al., 1996; Van Den Oever et Bos, 1998). Ce point est développé en détails dans le 1^{er} chapitre. La Figure 107 présente les courbes de comportement en traction des composites à renforts hydroliés sollicités dans la direction MD en fonction de la fraction volumique de fibres. Les courbes de comportement sont non linéaires et plusieurs zones peuvent être distinguées. La courbe est linéaire en début de chargement, puis un changement de pente intervient témoignant d'un premier endommagement.

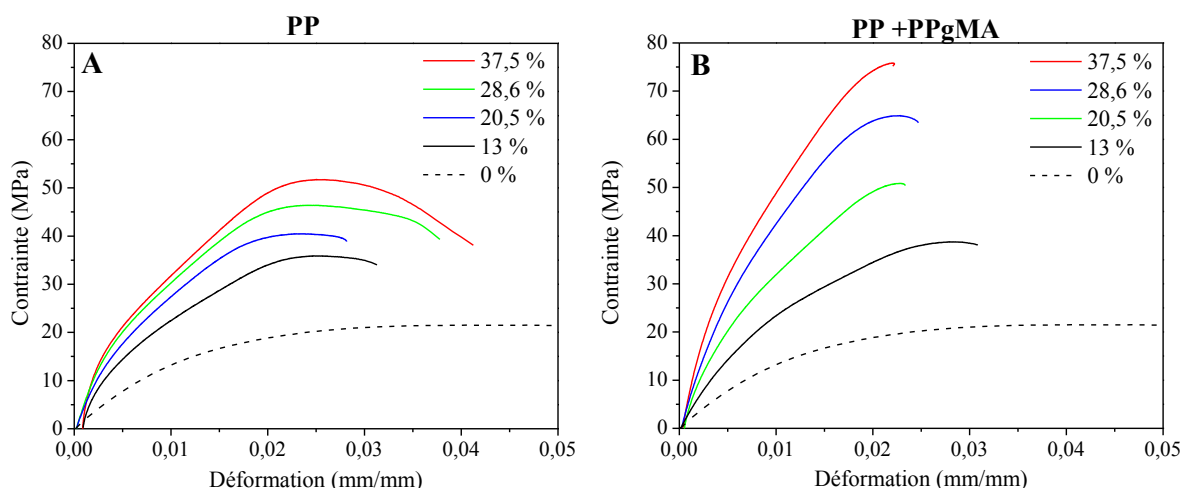


Figure 107 Influence de l'ajout de PPgMA à la matrice PP sur les courbes de comportement en traction des composites à renforts hydroliés sollicités dans la direction MD. A : matrice PP, B : matrice PP+PPgMA.

La non linéarité s'accroît avec l'augmentation de la fraction volumique de fibres. La rupture est précédée d'une diminution de la contrainte avec une déformation plastique limitée. Cette troisième zone est plus marquée pour les composites à matrice PP non greffée. Aucune striction n'est observée avant rupture de l'éprouvette.

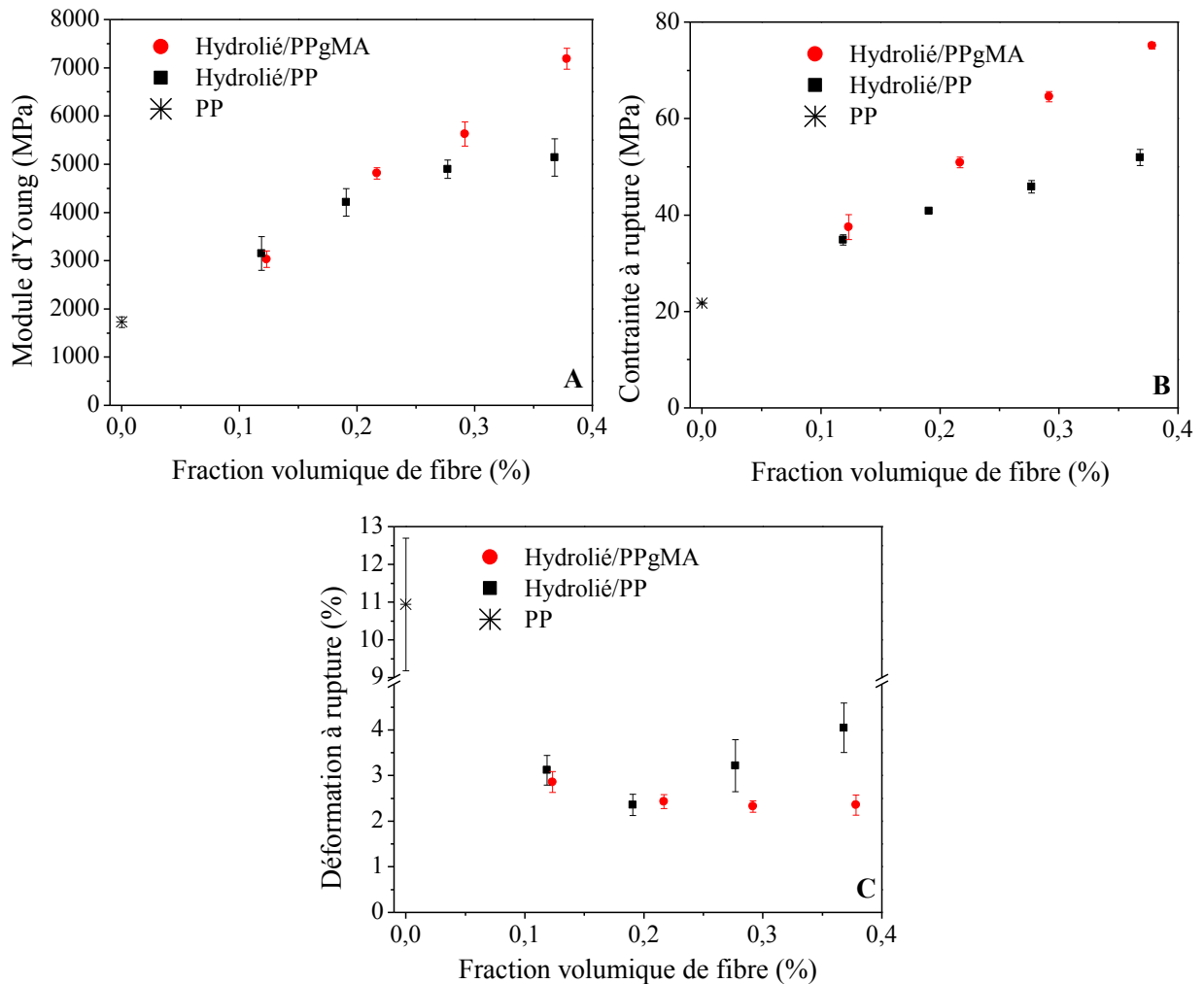


Figure 108 Influence de l'ajout de PPgMA à la matrice PP sur les propriétés mécaniques en traction des composites à renforts hydroliés sollicités dans la direction MD en fonction de la fraction volumique de fibres. A : Module d'Young, B : Contrainte maximale, C : Déformation à rupture.

La Figure 108 présente les propriétés mesurées en traction des composites à renforts hydroliés sollicités dans la direction MD en fonction de la fraction volumique de fibres. Le module d'Young et la contrainte maximale des composites à matrice PPgMA augmente linéairement avec la fraction volumique de fibres. Parallèlement, la déformation à rupture diminue.

L'ajout de PPgMA permet d'augmenter le module d'Young et la contrainte maximale tout en diminuant la déformation à rupture par rapport au composite à matrice PP. L'effet est plus prononcé au niveau de la contrainte à rupture et augmente avec la fraction volumique de fibres. Le module d'Young des composites à matrice PP semble atteindre une valeur seuil pour une fraction volumique de fibres autour de 30 %. La déformation à rupture des composites à matrice PP augmente avec la fraction volumique de fibres, mais pas celle des composites à matrice PP/PPgMA.

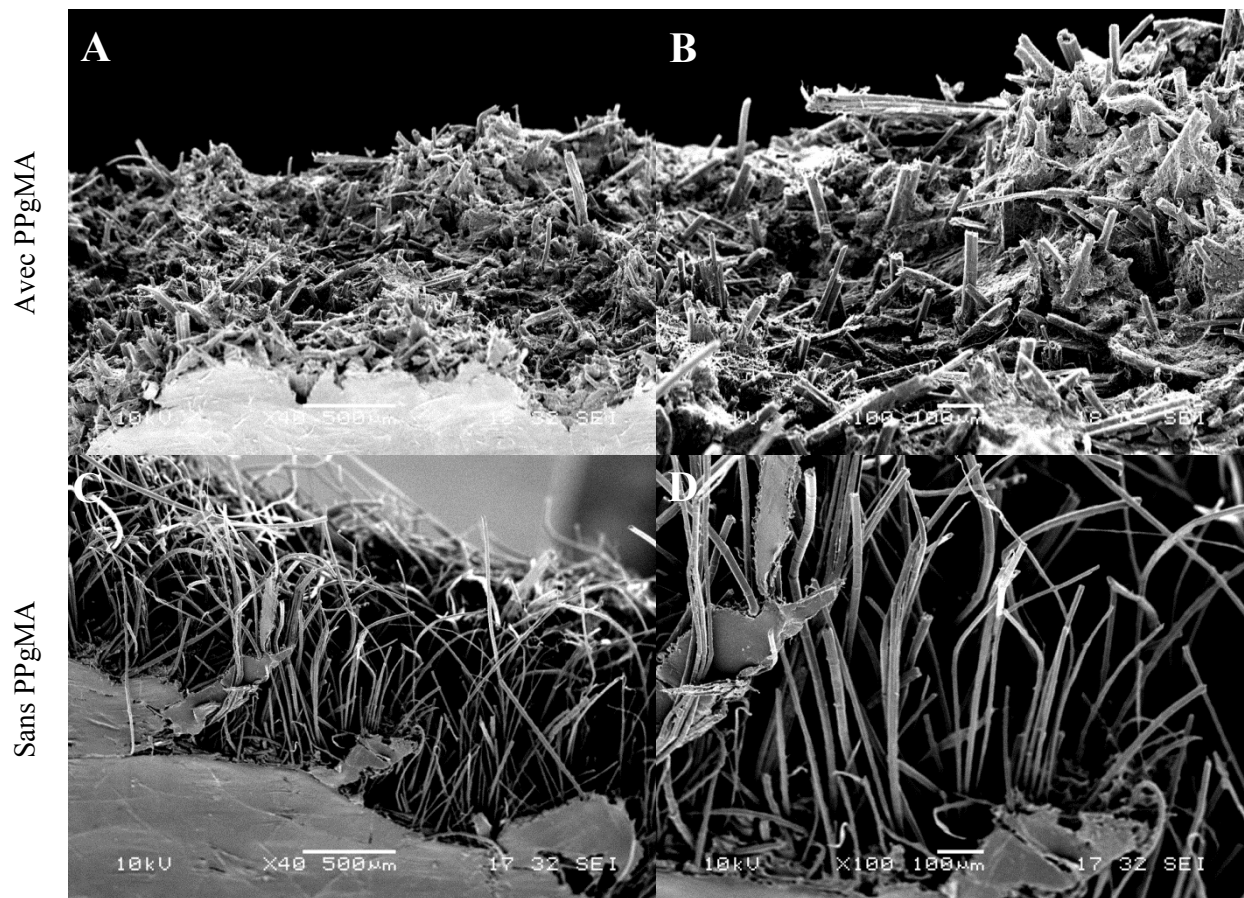


Figure 109 Observation par MEB de faciès de rupture en traction dans la direction MD de composites à matrice PP à renfort hydrolié. A et B : Avec agent couplant PPgMA (4%). C et D : Sans agent couplant. $V_f=28,6\%$.

L'étude des faciès de rupture en traction des deux types de composites permet de comprendre les différences de comportement observées (Figure 109). Les observations ont été réalisées au MEB. Malgré un rapport d'aspect élevé des renforts (~ 1000), les faciès de rupture des composites à matrice PP montrent de nombreux déchaussements sur des longueurs de plus d'un millimètre.

Il n'est pas possible d'observer de résidus de matrice à la surface des fibres. Ceci traduit une très faible adhérence de la matrice sur les fibres. Ces déchaussements peuvent être à l'origine de la troisième zone observée sur les courbes de comportement en traction des composites à matrice PP (Figure 107). Cette dernière correspond à un développement de dommages dans une zone localisée de l'éprouvette jusqu'à glissement complet des fibres et rupture de l'éprouvette. Avec ajout de PPgMA, le faciès de rupture de l'éprouvette est caractéristique d'une bonne adhérence fibre/matrice. Des déchaussements de fibres dont la longueur ne dépasse pas la centaine de micromètres sont visibles. L'étude des faciès de rupture met en évidence l'intérêt d'un ajout de PPgMA afin d'améliorer les propriétés mécaniques des matériaux.

Dans les conditions utilisées pour la mise en œuvre des composites, l'ajout de PPgMA à hauteur de 4% à la matrice PP permet d'augmenter les performances en traction des composites étudiés. Des optimisations du taux de PPgMA sont possibles. La fraction de PPgMA pourrait être modifiée en l'ajustant par rapport à la fraction volumique de fibres. Pour la référence commerciale Orevac CA100, le taux de greffage des chaînes de PP par les fonctions anhydride n'est pas connu. Il serait donc judicieux de quantifier le taux de greffage et comparer cet agent couplant avec d'autres références commerciales.

3.4. Influence de l'architecture du renfort non-tissé sur les propriétés des composites

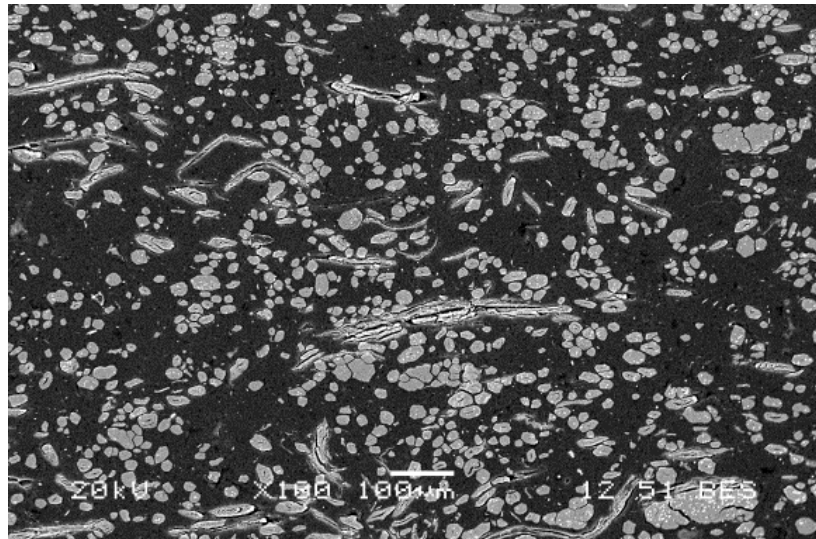
3.4.1. Observation de la microstructure des composites

Une analyse de la microstructure des composites a été effectuée afin d'évaluer la porosité des matériaux, étudier l'organisation et quantifier la division des fibres.

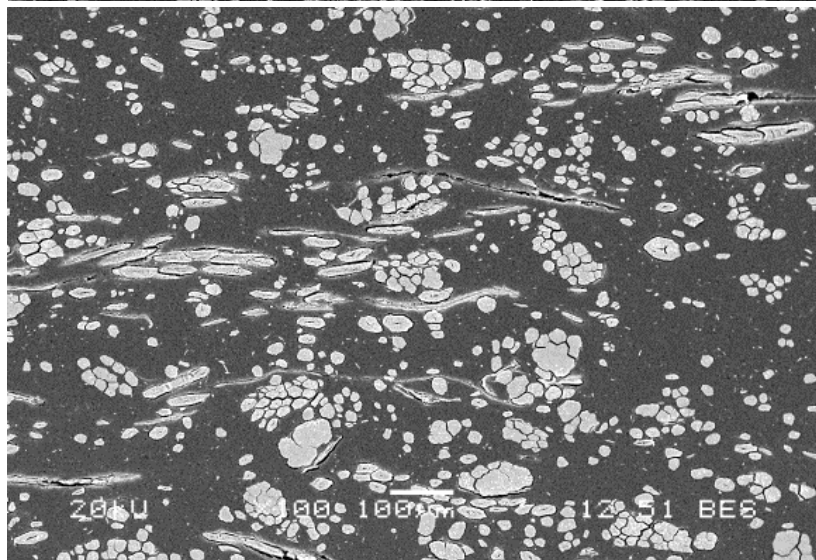
Les matériaux ont été préparés afin d'observer la tranche d'un échantillon dans la direction MD. La Figure 110 présente des images de la surface des échantillons dans la direction MD pour les trois renforts au grossissement x100.

Pour chaque matériau, une image est reconstituée à partir de 15 clichés pris au MEB avec un grossissement x100, afin de pouvoir réaliser une analyse d'image sur une surface significative de chaque échantillon (non présentées ici). L'analyse d'image est réalisée à l'aide du logiciel ImageJ. En utilisant une procédure de seuillage noir et blanc appropriée, l'analyse permet d'estimer la porosité apparente des matériaux et l'aire moyenne des renforts observés. La procédure est détaillée dans le chapitre II.3.3.

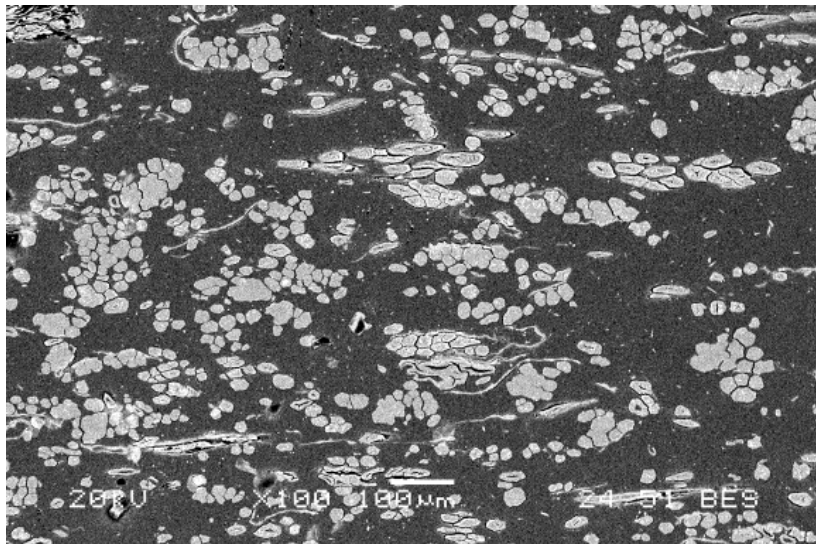
A
Hydroliés



B
Aiguilletés



C
Mat



**Figure 110 Observation MEB des composites dans la direction MD pour les trois renforts. $V_f=28,6$.
A : Hydrolié, B : Aiguilleté, C : Mat.**

La porosité est faible pour les trois matériaux témoignant d'une bonne imprégnation des renforts par la matrice (Tableau 31).

Renfort	V _{porosité} (%)	Nombre d'objets étudiés	Aire moyenne des objets et valeurs mini et maxi (μm^2)
Mat	0,42	4788	551 (20-32558)
Aiguilleté	0,35	6845	408 (20-26554)
Hydrolié	0,31	8857	307 (20-16700)

Tableau 31 Résultats de l'analyse d'image réalisée à partir de vue en coupe des matériaux dans la direction MD des renforts.

A l'aide de l'aire moyenne des objets observés, il est possible de comparer la division des renforts pour chaque matériau (Tableau 31). En moyenne, le renfort hydrolié possède la division la plus importante, l'aiguilleté est un peu moins divisé, puis le mat est le moins divisé des trois renforts. Ces résultats sont uniquement comparatifs et ne permettent pas de conclure sur l'état de division de manière absolue.

Ce degré de division peut être mis en relation avec le type de matière utilisé et le moyen de fabrication des renforts. Le mat est obtenu à partir de fibres teillées, peignées et coupées puis transformé par voie papetière (humide). Les deux autres non-tissés sont obtenus à partir de fibres teillées, coupées, affinées, cardées puis aiguilletées ou hydroliées. L'étape de cardage permet de diviser les faisceaux de fibres et l'hydroliage entraîne une division supplémentaire des renforts par rapport au simple cardage.

3.4.2. Propriétés mécaniques en traction des matériaux composites en fonction des processus de fabrication des préformes

Le comportement en traction des matériaux est étudié pour les deux directions des renforts, MD et CD. Il faut noter que dans le cas des aiguilletés l'orientation du voile nappé est proche d'un angle de 90° par rapport à la direction MD du rouleau de renfort. L'orientation préférentielle des fibres est donc proche de la direction CD. Pour le renfort hydrolié la direction MD correspond à la direction de sortie de carde. Pour le renfort mat, la direction MD correspond à la sortie de la ligne

3.4.2.1. Comportement en traction des composites dans la direction MD des renforts

La Figure 111 montre les courbes de comportement en traction des trois types de renforts dans la direction MD.

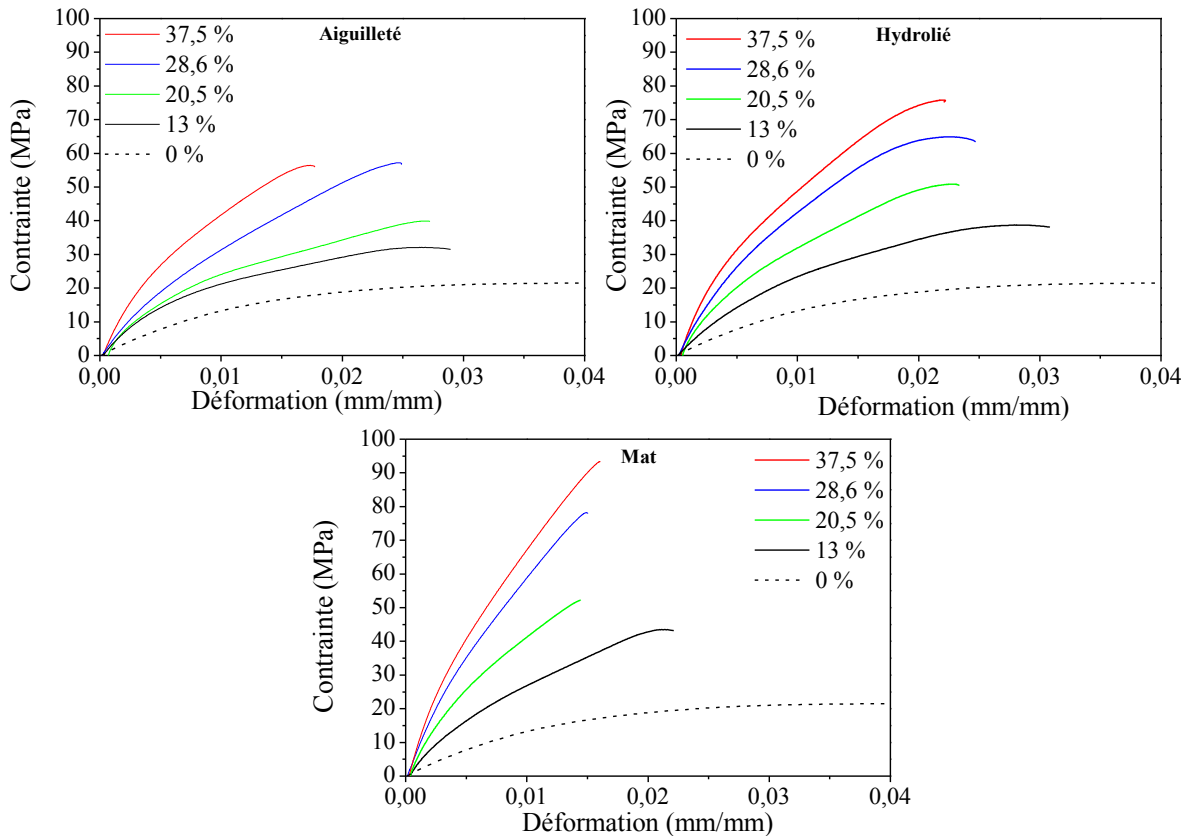


Figure 111 Courbes de comportement en traction des composites à renforts aiguilletés, hydroliés et mat, sollicités dans le sens machine MD.

Les courbes contrainte/déformation en traction sont très similaires pour les trois renforts. Le comportement est non linéaire. On peut distinguer 3 zones. Tous d'abord, le comportement des matériaux est linéaire en pied de courbe, puis un changement de pente intervient témoignant d'un endommagement. Ensuite, la non linéarité s'accroît avec l'augmentation de la fraction volumique de fibres. Enfin, la contrainte diminue accompagnée d'une faible déformation plastique, puis la rupture a lieu.

L'étude des faciès de rupture des éprouvettes permet d'obtenir des éléments supplémentaires pour étudier plus en détail le comportement en traction des matériaux (Figure 112)

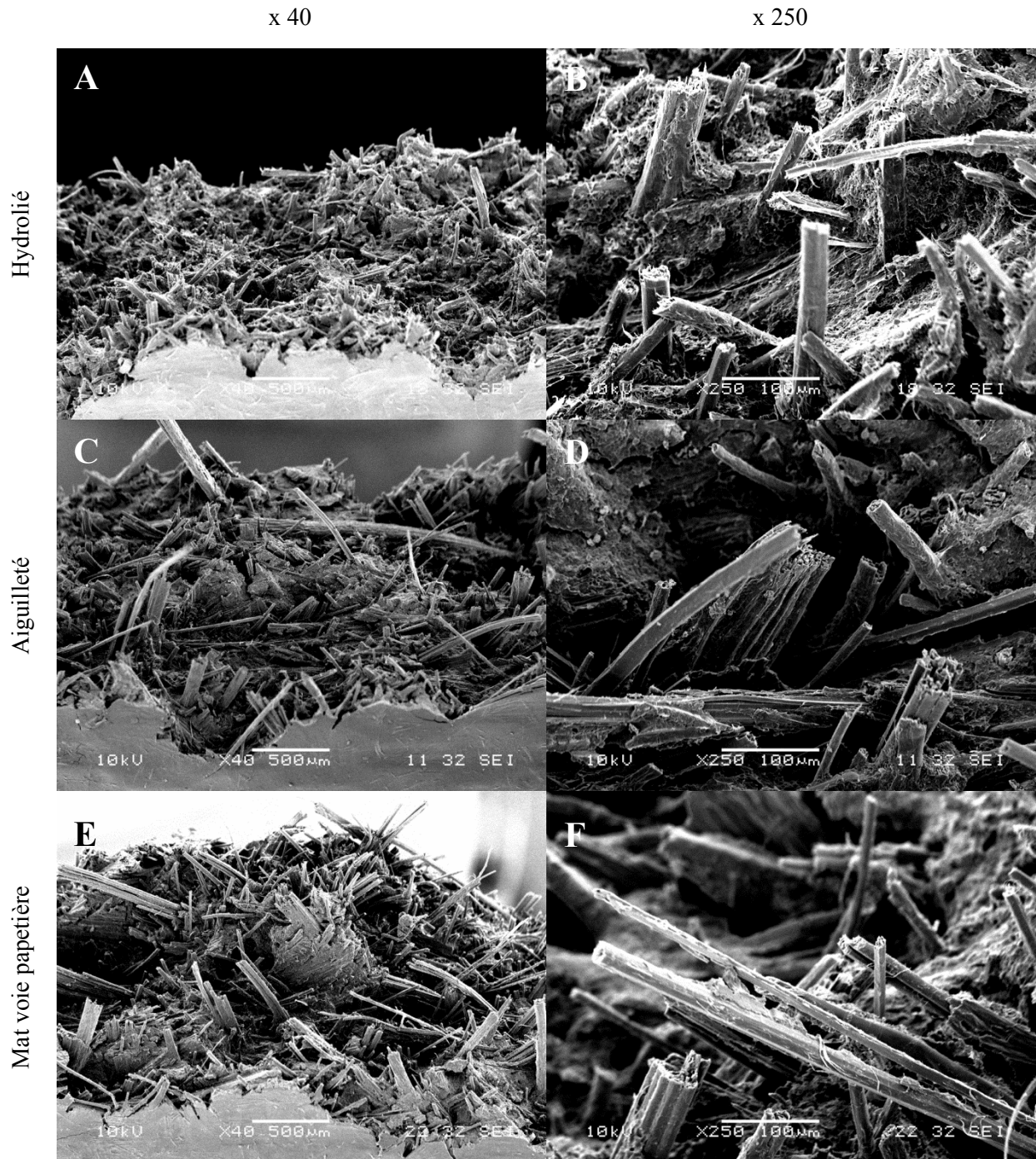


Figure 112 Observation par MEB de faciès de rupture en traction dans la direction MD de composites à matrice PP/PPgMA. A et B : Hydroliés, C et D : Aiguilleté. E et F : Mat. $V_f=28,6\%$. Les éprouvettes sont placées suivant un angle de 45° par rapport à l'axe d'observation.

La (Figure 112) présente les faciès de rupture en traction des trois composites dans la direction MD. Ces faciès présentent des déchaussements de fibres pour les trois matériaux. Leur observation à plus fort grossissement révèle une bonne cohésion fibre/matrice mis en évidence par la présence d'une rupture plutôt cohésive de l'interface fibre/matrice, avec

présence de matrice à la surface des fibres, ainsi que des faibles longueurs de déchaussement (Figure 113). Le faciès du composite à renfort hydrolié est plus homogène et les longueurs de déchaussement sont plus courtes.



Figure 113 Faciès de rupture du composite à renfort aiguilleté. Zoom sur une fibre unitaire.

Les faciès de rupture étudiés ici mettent en évidence des modes d'endommagement multiples et complexes. On retrouve des ruptures de fibres et de faisceaux, des déchaussements de fibres, des ruptures de matrice. Il n'existe pas à notre connaissance, d'étude systématique abordant les mécanismes d'endommagement de composites PP/lin à renfort non-tissé dans littérature. Cependant des travaux existent concernant des composites PP/verre à renfort mat, ainsi que pour des composites injectés PP/lin.

Bourmaud et al. (2013a) ont observés les mécanismes d'endommagements en traction, de composites PP/lin injectés, à l'aide d'observations réalisées in situ dans la chambre d'un MEB. Les mécanismes observés dans cette étude sont proches de ceux observés pour des composites à fibres courtes injectés verre/PP (Sato et al., 1991). En effet, pour les fibres orientées parallèlement à la direction de traction, les endommagements successifs au fur et à mesure de la sollicitation sont : premièrement une initiation de microfissures au niveau des extrémités de fibres, puis une propagation de ces fissures le long des fibres, suivies d'une

déformation plastique locale de la matrice entre ces fissures. La rupture intervient par une coalescence des fissures et donne lieu à des déchaussements.

Dans le cas d'une structure type mat, par exemple de fibres de verre, les renforts sont orientés aléatoirement dans le plan. L'initiation des mécanismes d'endommagement est une décohésion des fibres orientées perpendiculairement à la direction de chargement. Ensuite, les fibres plus alignées dans la direction de traction sont sollicitées, jusqu'à solliciter enfin les fibres orientées parallèlement à la direction de traction (Lindhagen et Berglund, 1998).

Dans le cas de composites à matrice PP et mat de verre constitués de mèches coupées, la décohésion des fibres au sein des mèches s'ajoute aux mécanismes d'endommagements cités ci-dessus et peut entraîner la formation d'une plus large zone d'endommagement (Karger-Kocsis et al., 1995).

Dans le cas de renforts en fibres végétales, les fibres sont assemblées sous forme de faisceaux, dont la cohésion est relativement faible (Charlet et Béakou, 2011), ce qui ajoute un élément supplémentaire dans la complexité des mécanismes d'endommagement des composites étudiés ici.

Les propriétés mécaniques moyennes en traction dans la direction MD des matériaux composites obtenues pour quatre fractions volumiques de fibres sont présentées dans le Tableau 32. La Figure 114 permet d'observer l'évolution des propriétés mécaniques de ces matériaux de manière graphique.

Matériaux	Vf(%)	E (MPa)	σ (MPa)	ε (%)
PP	0	1729 ± 110	22 ± 0,2	10,9 ± 1,8
Hydrolié / PPgMA MD	12,3	3035 ± 169	38 ± 3	2,9 ± 0,2
	21,7	4813 ± 115	51 ± 1	2,4 ± 0,2
	29,1	5632 ± 251	65 ± 1	2,3 ± 0,1
	37,8	7190 ± 216	75 ± 1	2,4 ± 0,2
Aiguilleté / PPgMA MD	13,4	3299 ± 238	33 ± 1	2,5 ± 0,2
	19,4	3601 ± 166	41 ± 3	2,7 ± 0,1
	27,7	4485 ± 237	56 ± 3	2,4 ± 0,1
	36,9	6484 ± 216	57 ± 1	1,7 ± 0,1
Mat / PPgMA MD	12,5	3852 ± 204	40 ± 5	1,9 ± 0,3
	19,5	5732 ± 318	51 ± 7	1,4 ± 0,2
	28,1	8024 ± 383	74 ± 5	1,5 ± 0,1
	36,9	9569 ± 681	93 ± 4	1,7 ± 0,1

Tableau 32 Propriétés mécaniques en traction des composites pour la direction MD des renforts.

Dans la direction MD, on constate une augmentation du module d'Young et de la contrainte maximale par rapport à la matrice vierge, accompagnée d'une diminution de la déformation à rupture. Cette augmentation des propriétés mécaniques en fonction de la fraction volumique de fibres traduit un mécanisme de renforcement de la matrice par les fibres de lin. Les propriétés mécaniques des composites à renfort mat et renfort hydrolié augmentent relativement linéairement avec la fraction volumique de fibres (Figure 114). Le transfert de charge est efficace entre la matrice et les fibres, certainement grâce au rapport d'aspect élevé des fibres. Par contre, un seuil est observé pour la contrainte à rupture des composites à renfort aiguilleté pour une fraction volumique avoisinant 30 %.

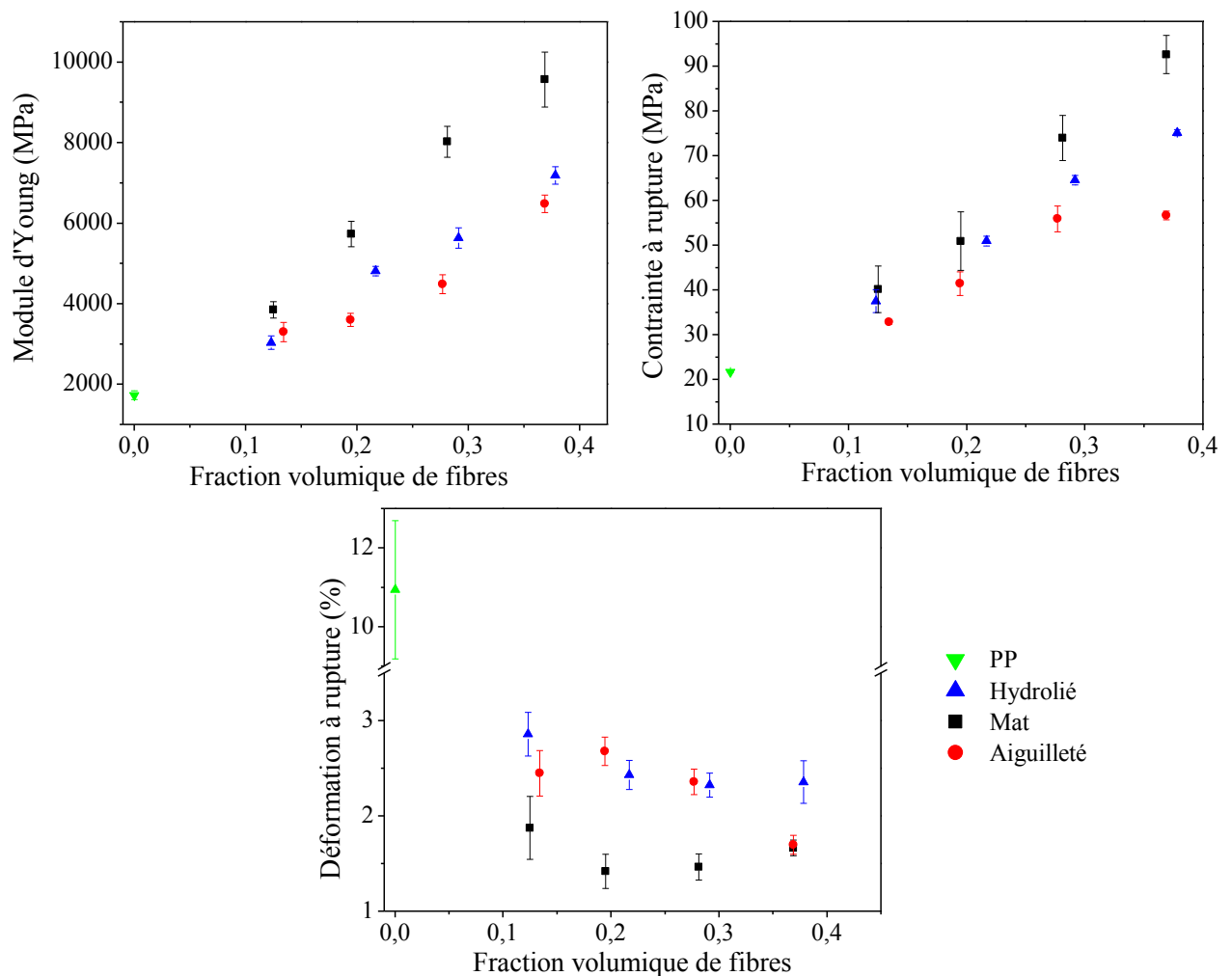


Figure 114 Propriétés mécaniques en traction des composites sollicités dans la direction MD.
Comparaison entre le renfort aiguilleté, hydrolié et le mat.

Les performances les plus élevées (rigidité, résistance) sont obtenues pour les composites à renfort mat, tandis que les composites renforcés par des aiguilletés présentent les performances les plus faibles.

Les comportements des matériaux composites à matrice PLA (Figure 102 et Tableau 27) ou PP (Figure 114 et Tableau 32) renforcés par des hydroliés sont comparés pour une sollicitation de traction dans la direction MD. Ceux-ci diffèrent selon la matrice utilisée, PP ou PLA. Le PP possède un comportement ductile accompagné d'une déformation à rupture de 11%. Le PLA possède un comportement plutôt fragile accompagné d'une déformation de 1,7 %, donc plus faible que la déformation des fibres de lin (2%). La capacité de déformation des composites Lin/PLA est donc limitée par le caractère fragile du PLA. Pour une fraction volumique de fibres identique (30%), le renfort hydrolié permet une augmentation du module d'Young et de la contrainte maximale de respectivement de 95 % et 23 % par rapport au PLA. L'augmentation est de 225% et 195 % par rapport au PP vierge.

3.4.2.2. Comportement en traction des composites dans la direction CD des renforts

Dans la direction CD (Figure 115), les courbes de comportement montrent une allure similaire à celle observé dans la direction machine MD.

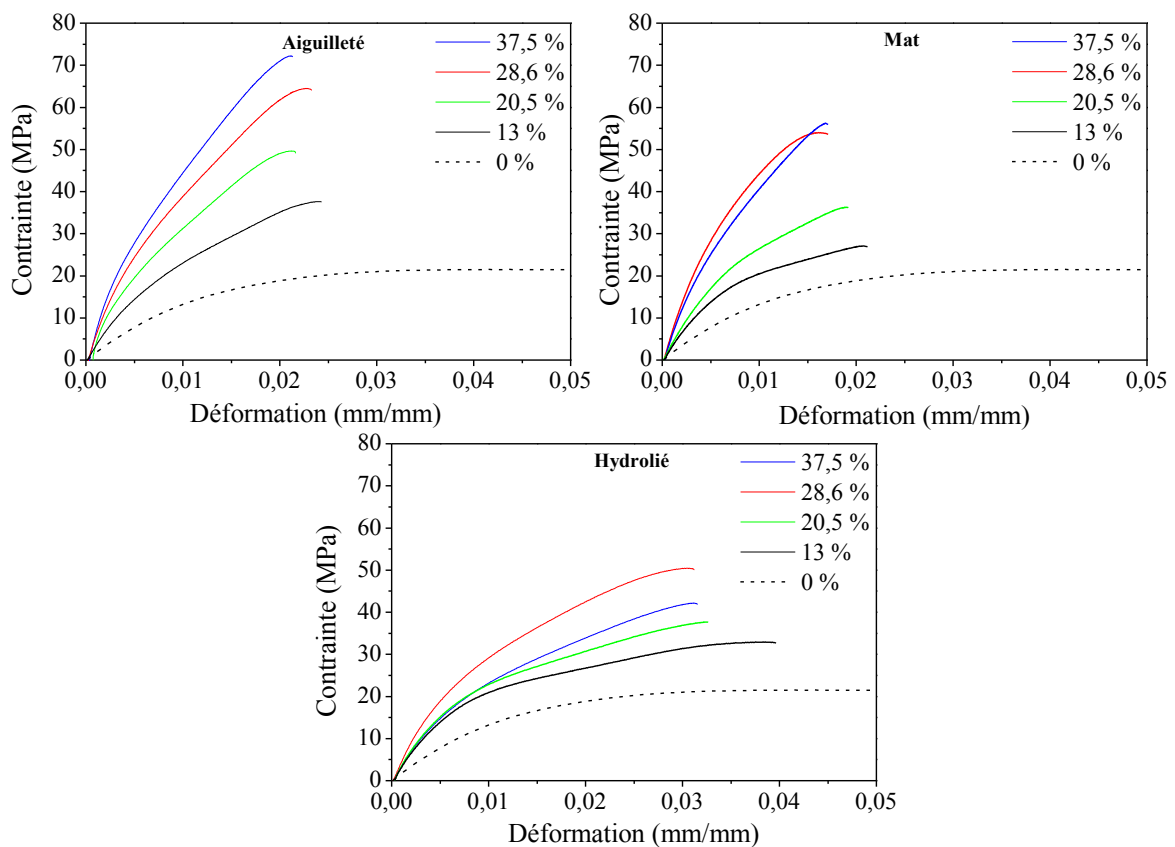


Figure 115 Courbes de comportement en traction des composites à renforts aiguilletés, hydroliés et mat, sollicité dans la direction CD des renforts.

Les propriétés mécaniques moyennes en traction dans la direction CD des matériaux composites obtenues pour quatre fractions volumiques de fibres sont présentées dans le Tableau 33. La Figure 116 permet d'observer l'évolution des propriétés mécaniques de ces matériaux de manière graphique.

Matériaux	$V_f(\%)$	Module d'Young (MPa)	Contrainte maximale (MPa)	Déformation à rupture (%)
PP	0	1729 ± 110	$21,7 \pm 0,2$	$10,94 \pm 1,76$
Hydrolié /PPgMA CD	12,7	3077 ± 162	33 ± 1	$3,7 \pm 0,1$
	20,4	3448 ± 194	37 ± 1	$3,3 \pm 0,2$
	27,6	3436 ± 259	42 ± 1	$3,3 \pm 0,2$
	36,8	4591 ± 157	50 ± 1	$3,0 \pm 0,2$
Aiguilleté /PPgMA CD	13,9	3542 ± 325	37 ± 2	$2,3 \pm 0,1$
	21,6	4820 ± 340	49 ± 1	$2,1 \pm 0,1$
	28,7	5443 ± 216	65 ± 1	$2,3 \pm 0,1$
	38,6	7433 ± 329	73 ± 2	$1,9 \pm 0,3$
Mat /PPgMA CD	13,3	3349 ± 366	29 ± 3	$2,1 \pm 0,4$
	21,5	3989 ± 217	38 ± 3	$1,9 \pm 0,2$
	27,8	5478 ± 545	55 ± 4	$1,7 \pm 0,1$
	36,5	6325 ± 214	53 ± 1	$1,6 \pm 0,1$

Tableau 33 Propriétés mécaniques en traction des composites pour la direction CD des renforts.

Pour les trois renforts, on note une augmentation du module d'Young des composites avec la fraction volumique de fibres (Figure 116). Pour les composites à renfort hydrolié et à renfort aiguilleté, la contrainte maximale des composites augmente avec la fraction volumique de fibre. Par contre, pour les composites à renfort mat, un seuil est atteint pour une fraction volumique de fibres d'environ 30 % et la contrainte à rupture diminue pour une fraction volumique plus élevée (36,5 %). Dans la direction transverse CD, les composites renforcés par des aiguilletés possèdent les propriétés mécaniques les plus élevées. Les composites renforcés par des renforts hydroliés et des renforts mat possèdent des propriétés mécaniques inférieures.

Les propriétés mécaniques en traction des composites sont différentes selon la direction de sollicitation. Les propriétés mécaniques des composites à renfort hydroliés et mat sont plus élevées dans la direction MD que dans la direction CD. L'inverse est observé pour les composites à renfort aiguilleté et résulte du nappage du voile en sortie de carte. On note donc une anisotropie de propriétés mécaniques dans le cas des trois renforts.

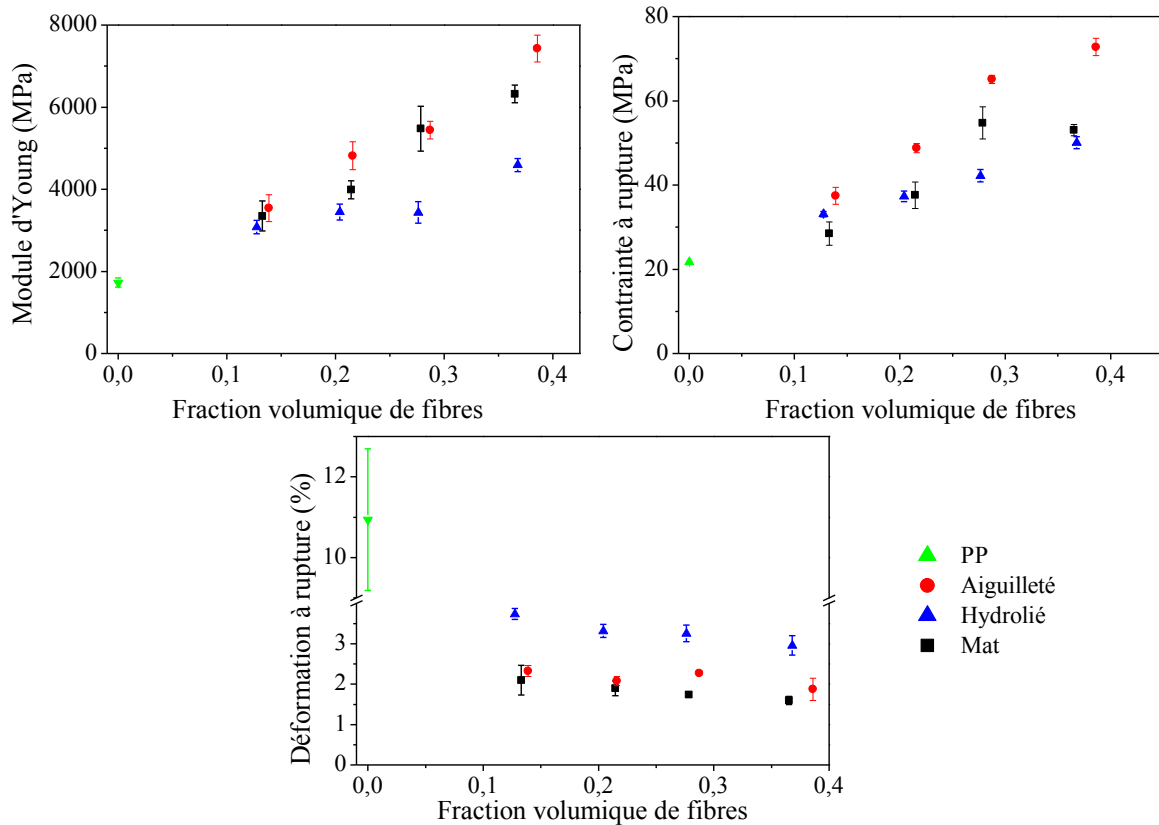


Figure 116 Propriétés mécaniques en traction des composites sollicités dans la direction CD. Comparaison entre le renfort aiguilleté, hydrolié et le mat.

Afin de hiérarchiser les performances des composites en s'affranchissant de l'anisotropie, les propriétés en traction des composites sont comparées pour la direction d'orientation préférentielle des fibres (hydrolié, mat : MD ; aiguilleté : CD). Les meilleures performances sont obtenues pour les renforts type mat. Par rapport à la matrice PP vierge, l'ajout d'un renfort mat avec une fraction volumique de 36,9 % permet de multiplier le module d'Young par 5,5 et la contrainte maximale par 4,5 (Tableau 32). L'ajout d'un aiguilleté ou d'un hydrolié permet de multiplier le module d'Young par environ 4,2 et la contrainte à rupture par 3,3. Les propriétés mécaniques mesurées sur les fibres unitaires des trois renforts sont proches. Les différences de propriétés mécaniques observées pour les matériaux composites proviendraient donc de l'organisation et de l'orientation des renforts.

La division plus élevée des faisceaux de fibres du renfort hydrolié, n'entraîne pas un gain de performance par rapport au renfort aiguilleté. La désorganisation et l'enchevêtrement du renfort (boucles dans les fibres) ne permettent pas de bénéficier du rapport d'aspect élevé des fibres. On note par ailleurs, une déformation à rupture plus importante pour les composites à renforts hydroliés par rapport aux deux autres renforts. Le renfort mat, malgré ses fibres plus courtes (10 mm) et son rapport d'aspect plus faible, bénéficie d'une meilleure

organisation des faisceaux de fibres. Pour les renforts aiguilletés, les dimensions des faisceaux, plus long mais plus fins entraînent une possibilité plus importante de courbure des fibres et donc une réduction des performances.

Il serait peut être possible d'atteindre des performances plus élevées dans la direction MD en augmentant la fraction volumique de fibres pour les composites à renfort hydroliés et mat.

Le Tableau 34 présente des données issues de la littérature concernant les propriétés mécaniques de quelques matériaux composites réalisés à partir de renfort non tissés (Tableau 34). Pour une même fraction volumique de fibres, on observe une très grande différence de module d'Young pour ces composites. Les composites réalisés ici à partir de renforts hydroliés possèdent des propriétés mécaniques en traction très supérieures à celles de la littérature. Cependant, les travaux de Chen et al. (2008) ne précisent pas si les matériaux sont complètement imprégnés. Les composites réalisés à partir des mats de lin possèdent des propriétés légèrement supérieures à celle de la littérature, cependant la direction des renforts n'est pas connue pour ces matériaux. Les propriétés des composites réalisées ici à partir de renforts aiguilletés possèdent des performances plus faibles que celles de la littérature.

Matériaux	$V_f(\%)$	Module d'Young (MPa)	Contrainte maximale (MPa)	Déformation à la rupture (%)
Hydrolié lin /PP (Chen et al., 2008)	37	1405 ± 101	$28,20 \pm 2,8$	ND
Hydrolié PET/résine polyester (Acar et Harper, 2000)	33	~1000	~65	ND
Mat de lin/PP/PPgMA (Bodros et al., 2007)	30	5681 ± 373	$73,6 \pm 1.2$	1,5
Mat de lin/PP/PPgMA (Bos et al., 2006)	37	~8500	~65	ND
Aiguilleté Lin/PP/PPgMA (Garkhail et al., 2000)	~45	~11000	~50	ND
Aiguilleté Lin/PP/PPgMA (Mieck et al., 1996)	~42	~12000	~115	ND

Tableau 34 Propriétés mécaniques en traction de composites à matrice PP renforcés par des non-tissés de lin issues de la littérature.

3.4.2.3. Analyse de l'anisotropie des propriétés mécaniques des composites

Les propriétés en traction des matériaux composites renforcés par les non-tissés aiguilleté, hydrolié et mat présentent des différences en fonction de la direction de sollicitation. Les propriétés mécaniques en traction sont donc anisotropes. Un ratio décrivant l'anisotropie de propriétés mécaniques entre les directions CD et MD nommé R est défini par :

$$R_M = \frac{M_{CD}}{M_{MD}}$$

où M est soit le module d'Young, soit la contrainte maximale, soit la déformation à rupture. Il est possible de définir une valeur maximale R+ et une valeur minimale R- du ratio R afin de tenir compte de la dispersion des propriétés mécaniques. Les écart-types R+ et R- sont définis par les équations suivantes :

$$R_{M+} = \frac{M_{CD+SD}}{M_{MD-SD}}$$

$$R_{M-} = \frac{M_{CD-SD}}{M_{MD+SD}}$$

où SD est l'écart-type associé au module d'Young, la contrainte maximale et à la déformation à rupture des matériaux composites.

Le Tableau 35 regroupe les valeurs de R calculées. Les valeurs de R_{M+} et R_{M-} sont données entre parenthèses. Au vu des données, il est difficile de décrire un comportement précis d'évolution de l'anisotropie des matériaux en fonction de la fraction volumique de fibres. Cependant on peut observer des tendances. Une valeur de R proche de 1 signifie que l'anisotropie est faible. Plus la valeur de R s'écarte de 1, plus l'anisotropie augmente.

La Figure 117 présente l'évolution du ratio R pour le module d'Young, la contrainte maximale et la déformation à rupture. Les barres d'erreurs correspondent aux valeurs minimales R- et maximales R+. Au niveau de la rigidité des matériaux, le ratio R_E des composites à renfort mat et hydrolié diminue avec la fraction volumique de fibres. Le ratio R_E des composites à renfort aiguilleté est plutôt stable, malgré une chute pour une fraction volumique de 22 %. Pour une fraction volumique élevée, l'aiguilleté est le moins anisotrope. Au niveau de la résistance en traction, le ratio R_σ du renfort aiguilleté est le plus stable et le plus élevé.

Matériaux	V _f (%)	R _E	R _σ	R _ε
Hydrolé	12,7	1,01 (-0,10 ; + 0,12)	0,88 (-0,07 ; + 0,08)	1,31 (-0,17 + 0,14)
	20,4	0,72 (-0,06 ; + 0,06)	0,73 (-0,04 ; + 0,04)	1,36 (-0,16 + 0,14)
	27,6	0,61(-0,07 ; + 0,08)	0,65 (-0,03 ; + 0,03)	1,4 (-0,17 + 0,16)
	36,8	0,64 (-0,04 ; + 0,04)	0,67 (-0,02 ; + 0,03)	1,26 (-0,24 + 0,2)
Aiguilleté	13,9	1,07 (-0,16 ; + 0,19)	1,14 (-0,08 ; + 0,08)	0,95 (-0,16 + 0,14)
	21,6	1,34 (-0,15 ; + 0,16)	1,18 (-0,09 ; + 0,11)	0,78 (-0,09 + 0,08)
	28,7	1,21 (-0,11 ; + 0,12)	1,16 (-0,07 ; + 0,08)	0,97 (-0,08 + 0,07)
	38,6	1,15 (-0,09 ; + 0,09)	1,28 (-0,06 ; + 0,06)	1,11 (-0,24 + 0,22)
Mat	13,3	0,87 (-0,13 ; + 0,15)	0,71 (-0,14 ; + 0,18)	1,12 (-0,48 + 0,33)
	21,5	0,70 (-0,07 ; + 0,08)	0,74 (-0,14 ; + 0,18)	1,34 (-0,34 + 0,27)
	27,8	0,68 (-0,1 ; + 0,11)	0,72 (-0,09 ; + 0,11)	1,19 (-0,16 + 0,14)
	36,5	0,66 (-0,06 ; + 0,07)	0,57 (-0,04 ; + 0,04)	0,96 (-0,11 + 0,1)

Tableau 35 Ratios R pour le Module d'Young, la contrainte maximale et la déformation à rupture des matériaux à renforts non tissés. Les données entre parenthèses correspondent aux valeurs maximales et minimales.

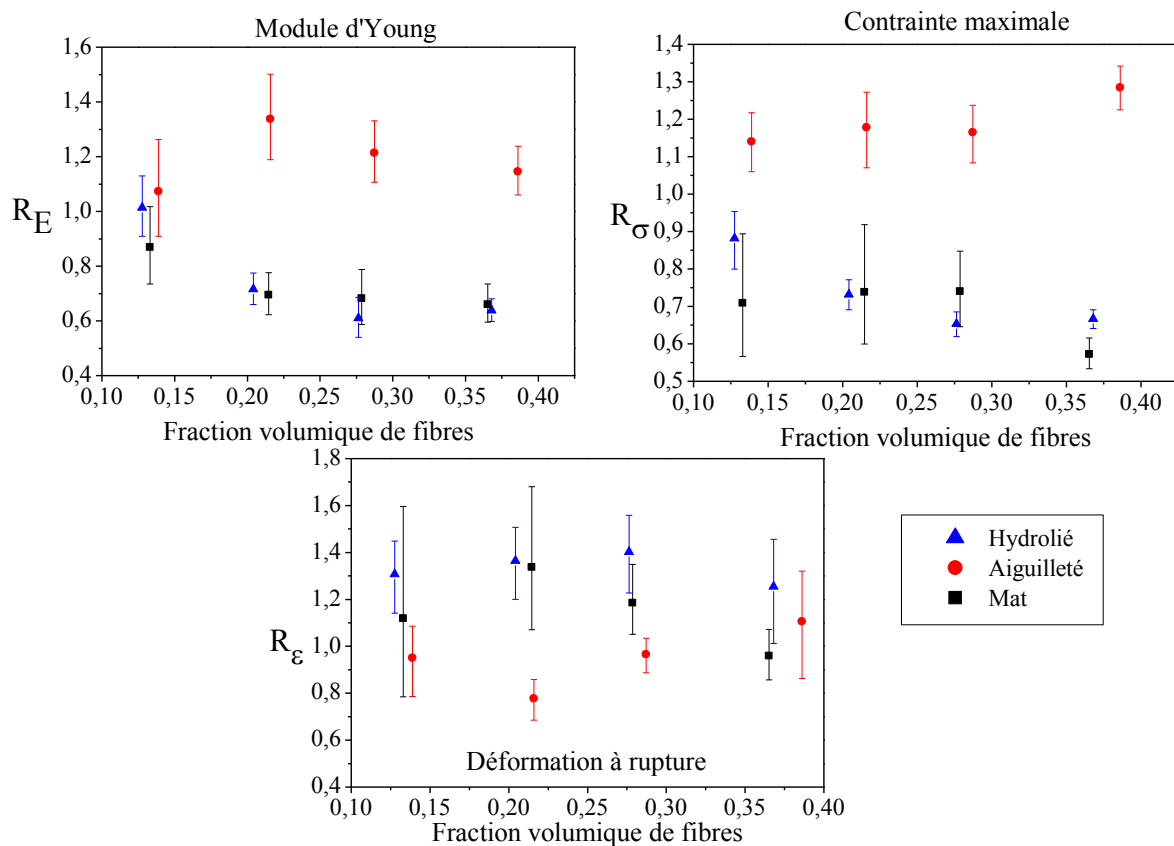


Figure 117 Evolution de l'anisotropie des propriétés mécaniques en traction

Le ratio R_{σ} du renfort hydrolié diminue, celui du mat est stable malgré une chute pour une fraction volumique de 37 %. Pour la déformation à rupture, l'hydrolié est le renfort le plus anisotrope. Le ratio R_{ε} du renfort aiguilleté est proche de 1 sauf pour une fraction volumique de 22 %.

L'anisotropie des propriétés mécaniques de renfort aiguilletés est décrite dans la littérature (Graupner et al., 2009; Mieck et al., 1996; Van de Velde et Kiekens, 2003). Le phénomène d'anisotropie des papiers est bien décrit, mais son influence sur les propriétés mécaniques de composites renforcés par des mats de lin mis en œuvre par voie papetière n'a pas été rapportée dans la littérature à notre connaissance.

L'anisotropie des propriétés mécaniques des composites traduit des organisations préférentielles des fibres au sein des préformes.

Le renfort aiguilleté et le renfort hydrolié sont produits par cardage d'un voile de fibre, ce qui entraîne dans la majorité des cas une orientation préférentielle dans le sens de sortie de la carde. Pour les hydroliés, la fabrication par cardage des fibres entraîne une orientation préférentielle des fibres dans le sens MD, ce qui explique les meilleures propriétés obtenues dans cette direction. Pour les aiguilletés, le voile de fibres est nappé à environ 90° par rapport à la direction de sortie de carde. L'orientation préférentielle des fibres est presque perpendiculaire à la direction de sortie de la nappeuse (voir section 4.6.2.1. du chapitre I), ce qui entraîne de meilleures propriétés des composites dans la direction CD.

Les propriétés transverses des composites à renforts hydroliés peuvent être en plus pénalisées par la présence de stries engendrées par le passage des jets d'eau à la surface du renfort. Celles-ci sont orientées perpendiculairement à la direction CD et peuvent générer des zones de fragilité dans le composite.

La vitesse de sortie de carde avant hydroliage est environ trois fois plus rapide que la vitesse de sortie de carde avant aiguilletage. De plus les cardes utilisées sont différentes. Ces différences peuvent expliquer la plus faible anisotropie du renfort aiguilleté.

Les mats sont produits par une méthode papetière. La majorité des papiers produits possèdent une orientation préférentielle induite par la machine. Dans les matériaux étudiés ici, l'orientation préférentielle des fibres entraîne des performances élevées dans la direction MD des composites, cependant elle entraîne une baisse conséquente des propriétés mécaniques des composites dans la direction transverse CD.

3.4.3. Comparaison de la rigidité expérimentale des matériaux avec celle prédite par un modèle micromécanique.

Les données expérimentales de rigidité en traction sont comparées ici aux valeurs estimées par le modèle d'Halpin et Tsai (Halpin et Kardos, 1976) et l'expression de Tsai et Pagano (R. F. Gibson, 2011) (voir Chapitre III).

Les valeurs de modules d'Young des fibres unitaires et de la matrice mesurées par essais de traction (Tableau 30), ainsi que les rapports d'aspect des renforts sont utilisés comme valeurs d'entrée du modèle. Les fractions volumiques de fibres utilisées sont celles déterminées à partir des fractions massiques de fibres mesurées (Tableau 32).

Le modèle considère plusieurs hypothèses : une distribution aléatoire des fibres dans le plan de stratification, une répartition homogène des renforts, des fibres individuelles (absence de faisceaux), une porosité nulle, un comportement élastique linéaire des fibres et une parfaite cohésion fibre/matrice. Le modèle ne prend pas en compte la dispersion du module d'Young des fibres unitaires ni la dispersion du rapport d'aspect des fibres.

Dans le cas présenté dans cette étude, l'anisotropie des renforts n'est pas prise en compte dans le modèle. Il est donc nécessaire d'utiliser la moyenne des valeurs expérimentales CD et MD afin de s'affranchir de l'anisotropie de propriétés mécaniques. Cela correspondrait à un empilement [MD/CD] de plis alternés de manière symétrique

Le Tableau 36 présente la rigidité en traction des composites mesurée dans les directions MD et CD, ainsi que la moyenne de ces deux valeurs pour les quatre fractions volumiques étudiées. Ces valeurs sont comparées avec celles prédites par les modèles micromécanique. La Figure 118 présente une comparaison graphique entre les valeurs estimées par le modèle et les données expérimentales.

Pour les composites à renforts hydroliés et aiguilletés, le modèle surestime la rigidité en traction. Pour l'aiguilleté, les différences sont de l'ordre de 10 à 15 % par rapport à la rigidité mesurée dans la direction CD et de l'ordre de 15 à 30 % pour la rigidité dans la direction MD. Pour le renfort hydrolié, l'écart par rapport au modèle est d'environ 10 à 15 % dans la direction MD et est relativement élevé dans la direction CD. Les différences sont de l'ordre de 15 à 50 %. Pour le renfort mat, le modèle sous-estime la rigidité dans la direction MD de l'ordre de 10 à 40 % et surestime la rigidité de l'ordre de 0 à 10 % dans la direction CD.

En comparant la moyenne des valeurs CD et MD (Figure 118) pour le module d'Young expérimental aux valeurs du modèle, on note que le modèle surestime fortement la

rigidité pour les composites à renforts hydroliés et aiguilletés, mais une corrélation raisonnable est obtenue pour les composites à renforts mats.

Matériaux	V _f (%)	E MD (MPa)		E CD (MPa)		E (MD+CD)/2 (MPa)		E modèle (MPa)
PP	0	1729 ± 110		1729 ± 110		1729 ± 110		1729
Hydrolié /PPgMA	12,3	3035 ± 169	(-16,3)	3077 ± 162	(-15,2)	3056 ± 158	(-15,8)	3628
	21,7	4813 ± 115	(-8,0)	3448 ± 194	(-34,1)	4135 ± 742	(-21,0)	5233
	29,1	5632 ± 251	(-13,6)	3436 ± 259	(-47,3)	4534 ± 1182	(-30,5)	6521
	37,8	7190 ± 216	(-10,4)	4591 ± 157	(-42,8)	5890 ± 1351	(-26,6)	8029
	13,9	3299 ± 238	(-16,5)	3542 ± 325	(-10,3)	3421 ± 321	(-13,4)	3950
	21,6	3601 ± 166	(-32,0)	4820 ± 340	(-9,0)	4211 ± 557	(-20,5)	5297
Aiguilleté /PPgMA	28,7	4485 ± 237	(-31,6)	5443 ± 216	(-17,0)	4964 ± 574	(-24,3)	6555
	38,6	6484 ± 216	(-22,0)	7433 ± 329	(-10,5)	6959 ± 563	(-16,2)	8309
	12,5	3852 ± 204	(+12,7)	3349 ± 366	(-2,0)	3600 ± 391	(+5,3)	3419
Mat /PPgMA	19,5	5732 ± 318	(+27,6)	3989 ± 217	(-11,2)	4860 ± 954	(+8,2)	4491
	28,1	8024 ± 383	(+37,5)	5478 ± 545	(-6,1)	6751 ± 1400	(+15,7)	5836
	36,9	9569 ± 681	(+32,3)	6325 ± 214	(-12,5)	7947 ± 1766	(+9,9)	7231

Tableau 36 Valeurs expérimentales et théoriques du module d'Young des matériaux. Les valeurs de module d'Young dans la direction CD, MD ainsi que la moyenne des deux directions sont reportées. Les valeurs entre parenthèses correspondent à l'écart par rapport aux valeurs estimées par les modèles micromécaniques.

Les différences entre valeurs expérimentales et théoriques peuvent trouver plusieurs origines. On note tout d'abord la validité des modèles, il s'agit d'approches. En effet la morphologie des préformes s'écarte de la morphologie et de l'organisation idéale considérées par le modèle. Pour l'aiguilleté, la courbure importante des fibres due à leur longueur et les quelques boucles observées peuvent induire une baisse de la rigidité. Pour l'hydrolié, la désorganisation des fibres et les nombreuses boucles peuvent être à l'origine de la baisse de rigidité. On note un effet de seuil concernant l'évolution de la contrainte à rupture des composites pour le renfort mat (Figure 116) et aiguilleté (Figure 114) lors d'une sollicitation dans la direction CD pour le mat et MD pour l'aiguilleté, c'est-à-dire dans la direction perpendiculaire à l'orientation préférentielle des fibres. La valeur de contrainte maximale augmente jusqu'à une fraction volumique de 28,6 % puis n'augmente plus pour l'aiguilleté et diminue pour le mat, pour une fraction volumique de 37,5 %. Au delà d'une certaine fraction

volumique, située aux alentours de 30 %, la résistance à la traction dans la direction n'augmente plus en fonction de la fraction volumique de fibres.

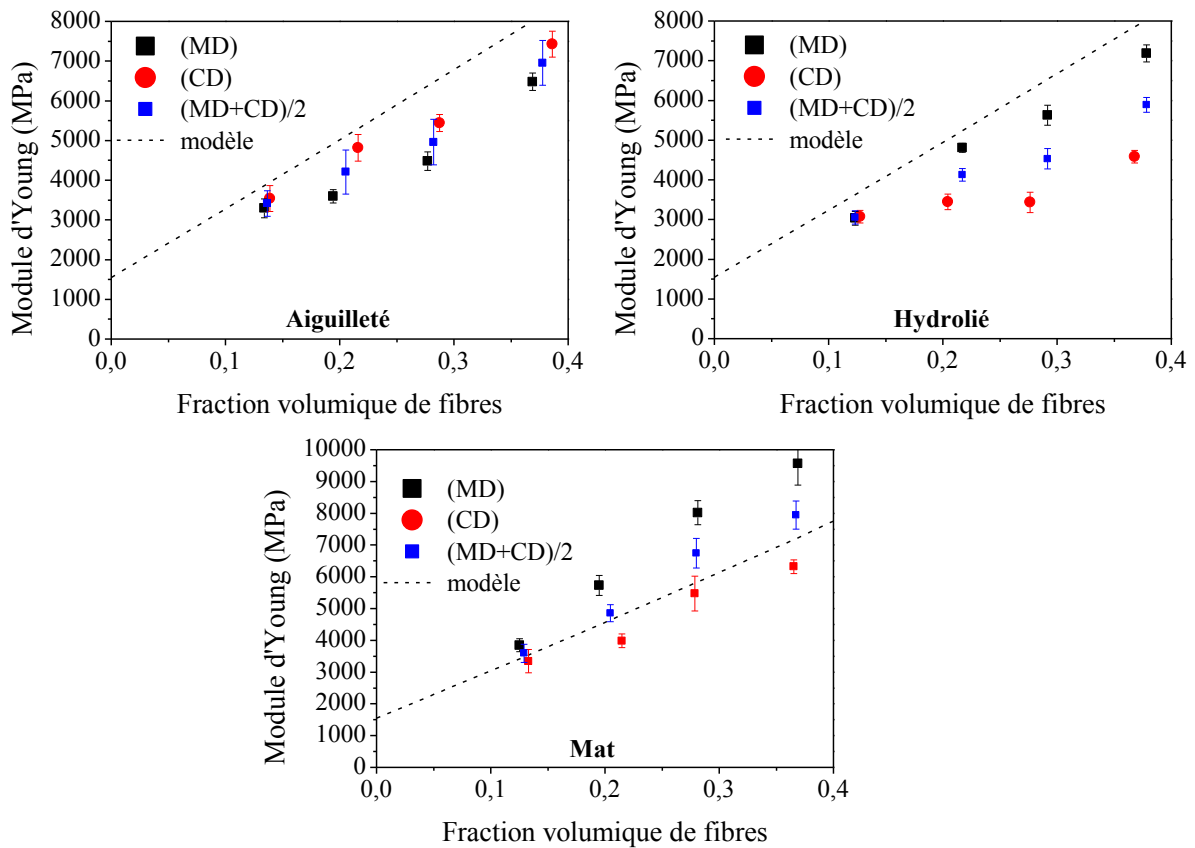


Figure 118 Comparaison entre les valeurs expérimentales et théoriques du module d'Young des matériaux en fonction de la fraction volumique de fibres.

Dans le cas de composites mat de verre/PP mis en œuvre par thermocompression, Ericson et Berglund (1992) note un seuil pour la contrainte à rupture des matériaux aux alentours d'une fraction volumique de 20%, pour des matériaux isotrope. Ausias et al. (2013) notent un seuil pour la contrainte à rupture de composites injectés Lin/PP à fibres courtes, aux alentours d'une fraction volumique de 30 %.

Afin d'expliquer ce seuil, un parallèle peut être fait avec le cas de composites à renfort UD sollicités en traction transverse. Dans ce cas la faible contrainte à rupture, provient de concentrations de contraintes dans la matrice autour des fibres. Kies a défini un modèle pour décrire l'évolution des concentrations de contraintes en considérant un élément d'un stratifié sollicité en traction transverse. Il montre l'augmentation des concentrations de contrainte en fonction de la fraction volumique de fibres due à la diminution de l'espace entre fibres (R. F. Gibson, 2011). Dans le cas des non-tissés, l'augmentation de la fraction volumique de fibres augmentent le nombre de fibres sollicitées hors de leur axe longitudinal et diminue également

l'espace entre les fibres, ce qui pourrait expliquer le seuil observé pour la contrainte à rupture. De plus l'augmentation de la fraction volumique de fibres au dessus de ce seuil peut entraîner des endommagement du renfort dans les zones de contact entre fibres

L'utilisation du modèle micromécanique abordé ici permet d'estimer raisonnablement la rigidité des composites à renfort mat, sans par contre prendre en compte l'anisotropie. Cependant, dans le cas des composites à renfort aiguilletés et hydroliés, les points expérimentaux sont largement surestimés par le modèle. Au-delà de l'anisotropie s'ajoutent la morphologie et l'organisation particulière des renforts. Les fibres courbées, bouclées, l'entremêlement des fibres et la dispersion des dimensions des renforts peuvent expliquer les écarts observés par rapport aux hypothèses prises en compte dans le modèle. Le modèle pourrait donc être amélioré afin de prendre en compte l'anisotropie des propriétés mécaniques des composites et l'efficacité du renfort.

3.5. Bilan de l'étude B

D'une manière générale, la structure d'un non-tissé est fortement influencée par le procédé de création du voile de fibres et le moyen de consolidation utilisé. Dans cette deuxième partie, nous avons montré que la structure d'un renfort en lin non tissé influence les propriétés de matériaux composites à matrice PP. Trois renforts non tissés ont été évalués.

L'étude par microtomographie et MEB a permis de mettre en évidence les différences de structures des renforts. De par leur mode de fabrication, la morphologie des ceux-ci est fortement influencée. Malgré les méthodes de consolidation utilisées, les trois renforts possèdent principalement une structure en deux dimensions.

Les processus de fabrication des préformes ont un impact limité sur les propriétés mécaniques des fibres unitaires. Une diminution de 12 % du module d'Young est observée entre des fibres teillées et affinées et des fibres ayant subi un aiguilletage ou un hydroliage. Les raisons de cette diminution ne sont pas connues. Cependant, lors de l'hydroliage, l'action mécanique des jets d'eau et le séchage consécutif entraînent des sollicitations thermo-hygro-mécaniques.

L'utilisation d'un agent couplant PPgMA ajouté à la matrice PP permet d'améliorer les performances en traction des composites, mis en œuvre par thermocompression.

Pour les trois types de renforts, une anisotropie des propriétés mécaniques en traction est observée entre la direction MD et CD des renforts. Celle-ci témoigne de l'orientation préférentielle des fibres induites par le processus de mise en œuvre de chaque renfort. Des

différences importantes de propriétés mécaniques en traction sont observées entre les trois renforts. Les matériaux renforcés par des mats obtiennent les meilleures propriétés en traction, bénéficiant de fibres les plus rectilignes. Cependant ces derniers sont très anisotropes. Les matériaux renforcés par des renforts hydroliés et aiguilletés possèdent des propriétés similaires. L'état de division plus élevé des renforts hydroliés, ne permet pas d'augmenter les propriétés des composites par rapport aux renforts aiguilletés. En effet, l'enchevêtrement important des fibres et la présence de boucles dans le renfort pénalisent les performances des composites.

Il existe d'autres modèles afin d'estimer la rigidité de composites renforcés par des fibres courtes, par exemple le modèle de Cox-Krenchel (Cox, 1952; Krenchel, 1964) qui permettent d'obtenir de bonnes corrélations entre expérience et théorie pour des composites PP/lin (Garkhail et al., 2000; Van Den Oever et al., 2000). Des approches numériques utilisant des éléments finis ont aussi été développées par d'autres auteurs et permettent d'obtenir de bonnes corrélations par rapport aux modèles micromécaniques et aux valeurs expérimentales (Hine et al., 2002; Lusti et al., 2002).

Chapitre VI CONNAISSANCES DES PROPRIETES MECANIQUES

DES FIBRES DE LIN PRODUITES PAR L'ENTREPRISE VAN

ROBAEYS FRERES

Les propriétés mécaniques rapportées dans la littérature pour des fibres de lin sont très dispersées (cf. Chapitre I). Ces études ont été réalisées à partir de lots de lin provenant de variétés différentes, cultivées durant des années différentes et dans des zones géographiques différentes. De plus, il peut s'agir soit de fibres unitaires mais aussi de faisceaux de fibres, en fonction du choix des auteurs. Enfin les conditions de croissance et de rouissage peuvent aussi varier. Ces différents facteurs pourraient expliquer la dispersion des propriétés mécaniques des fibres. Il existe par ailleurs une multitude de variétés enregistrées au catalogue européen des semences, et disponibles actuellement sur le marché (Tableau 37).

VARIETES	Comportement				PRODUCTION		RICHESSSE		PRECOCITE		Année d'inscription
	Fusariose	Brûlure	Oïdium	Verse	RNB	LT	LT	FT	Floraison	Maturité	
AGATHA	AT	TT	TS	AT	C	E	D	D	Demi Précoce	Demi Précoce	2000
ALIZEE	AT	TT	TS	MT	C	C	C	B	Demi tardive	Demi tardive	2003
ALTEA	T	TS	TS	MT	C	B	B	B	Demi tardive	Tardive	2010
AMINA	T	TS	TS	AT	C	C	C	B	Demi tardive	Demi tardive	2007
ANDREA	AT	TS	TS	AT	D	C	B	B	Tardive	Tardive	2008
ARAMIS	TT	TT	TS	MT	C	A	A	B	Tardive	Demi tardive	2011
ARETHA	AT	TT	TS	T	C	B	B	B	Tardive	Demi tardive	2008
BONITA	AT	TS	TS	MT	C	C	C	B	Tardive	Demi tardive	2006
CALISTA	AT	TT	TS	MT	C	C	C	B	Demi tardive	Demi tardive	2009
CHANTAL	AT	TS	TS	T	C	A	A	B	Tardive	Demi tardive	2010
DAMARA	T	TT	TS	MT	B	A	A	B	Tardive	Demi tardive	2011
DRAKKAR	TT	TS	TS	MT	C	B	B	B	Très Tardive	Tardive	2003
EDEN	T	TT	TS	T	D	D	D	A	Demi Précoce	Demi tardive	2009
ELODIE	AT	TS	TS	MT	C	A	A	B	Tardive	Tardive	2011
EVEA	TT	TS	TS	MT	C	A	A	B	Tardive	Tardive	2010
FILEA	T	AT	TS	MT	C	B	B	B	Demi tardive	Demi tardive	2012
LISSETTE	AT	TS	TS	AT	B	A	A	A	Tardive	Tardive	2011
LOREA	T	TS	TS	AT	D	E	D	C	Tardive	Tardive	2004
LUCIE	AT	TS	TS	MT	D	D	C	B	Demi tardive	Demi tardive	2012
MARYLIN	T	S	TS	MT	C	D	C	B	Demi Précoce	Demi Précoce	1998
MELINA	AT	TT	TS	AT	C	D	D	C	Demi tardive	Demi Précoce	2003
NOEMIE	AT	TS	TS	MT	B	A	A	B	Tardive	Tardive	2011
PODIUM	AT	TS	AT	T	D	E	E	B	Très Tardive	Très Tardive	2012
SOFIE	TT	TT	TS	AT	D	D	C	C	Demi tardive	Précoce	2006
SUZANNE	T	S	TS	MT	C	C	C	B	Demi Précoce	Demi Précoce	2005
TELIOS	TT	AT	T	MT	B	A	B	B	Très Tardive	Très Tardive	2012
VESTA	T	TT	TS	MT	C	B	B	C	Demi tardive	Demi tardive	2007

Roui non battu, lin teillé, richesse LT et FT : notes de A à E où A = forte productivité et E = faible productivité

TT
MT

Très Tolérante
Moyen. Tolérante

T
S

Tolérante
Sensible

AT
TS

Assez Tolérante
Très sensible

Tableau 37 Variétés de lin textile disponible pour la culture en France en 2013. (Bert et al., 2014)

D'après le Tableau 37, les variétés disponibles possèdent des caractéristiques différentes. La sélection variétal et le choix variétal du lin est fait sur des critères de rendements (paille, fibres, graines), de résistance aux maladies, de tenue à la verse, et non sur des critères de résistance mécanique des fibres.

L'entreprise Van Robaeys Frères s'approvisionne en paille de lin dans neuf zones de culture (Figure 119). C'est un cas particulier pour ce teillage Français. Chaque zone de culture constitue un terroir distinct avec des conditions pédoclimatiques et un climat spécifiques. Les conditions pédoclimatiques sont relatives à la structure du sol ainsi qu'à sa température et son humidité. Pour chaque terroir, les chefs de plaines employés par l'entreprise organisent le choix des variétés à semer. La décision est influencée par l'agriculteur, le semencier et le teilleur de lin. Le facteur humain a donc une part importante dans le choix variétal.



Figure 119 Situation géographique des terroirs de culture de lin dans lesquels s'approvisionne l'entreprise Van Robaeys Frères.

L'objectif de ce chapitre est dans une première partie d'analyser le choix variétal pour les différents terroirs. Dans ce but, l'évolution des surfaces semées, par variétés, sur chaque terroir, est étudiée pour les années 2009 à 2013. Puis, dans une deuxième partie, l'objectif est de connaître les propriétés mécaniques des fibres de lin cultivées pour l'entreprise Van Robaeys Frères. Dans ce but, les propriétés mécaniques de 10 lots de lin sont mesurées par des essais de traction sur fibres unitaires. L'influence des propriétés mécaniques des fibres sur celles de matériaux composites est étudiée.

1. CHOIX DES VARIETES DE LIN PAR TERROIR

On rappelle qu'un terroir correspond à un ensemble de terres d'une région, considérées du point de vue de leurs aptitudes agricoles et fournissant un ou plusieurs produits caractéristiques.

Le Tableau 38 présente les surfaces moyennes de culture de lin dans chaque terroir d'approvisionnement de l'entreprise. Les surfaces cultivées sont différentes d'un terroir à un autre et varient d'une année sur l'autre en fonction des disponibilités des parcelles (Tableau 38). En effet, un délai de 6 à 7 ans doit être respecté entre chaque culture de lin sur une même parcelle. La culture de lin doit donc être insérée dans un cycle de rotation des cultures. Sur la période de 2009 à 2013, la moyenne des surfaces emblavées est d'environ 3400 ha. Celle-ci évolue peu au cours des 5 années.

Terroir	Vexin	Oise	Seine-Mme	Somme	Hesdin	St-Pol	St-Omer	Flandre	Artois	Total
Surface moyenne (ha)	376	531	218	866	342	732	89	266	14	3420

Tableau 38 Surface moyenne emblavée par terroir durant les années 2009-2013

On note également que le nombre de variétés cultivées est important (Tableau 39). Les années d'inscription des variétés sont également très différentes. On distingue des variétés anciennes (Hermès) et d'autres très récentes (Damara). La Figure 120 présente les proportions de variétés sur la totalité des surfaces semées de 2009 à 2013. Sur les quinze variétés recensées, certaines occupent plus de 15 % des surfaces tandis que d'autres ne dépassent pas les 5 % (Figure 120). Alizée, Drakkar, Marilyn et Suzanne représentent plus de 70 % des surfaces cultivées. Les proportions de chaque variété sont donc très différentes

Nom	Année d'inscription
Hermès	1992
Electra	1996
Marylin	1998
Agatha	2000
Alizée	2003
Drakkar	2003
Mélina	2003
Suzanne	2004
Sofie	2006
Vesta	2007
Aretha	2008
Eden	2009
Chantal	2010
Aramis	2011
Damara	2013

Tableau 39 Variétés cultivées entre 2009 et 2013 pour Van Robaeys et années d'inscription au catalogue officiel

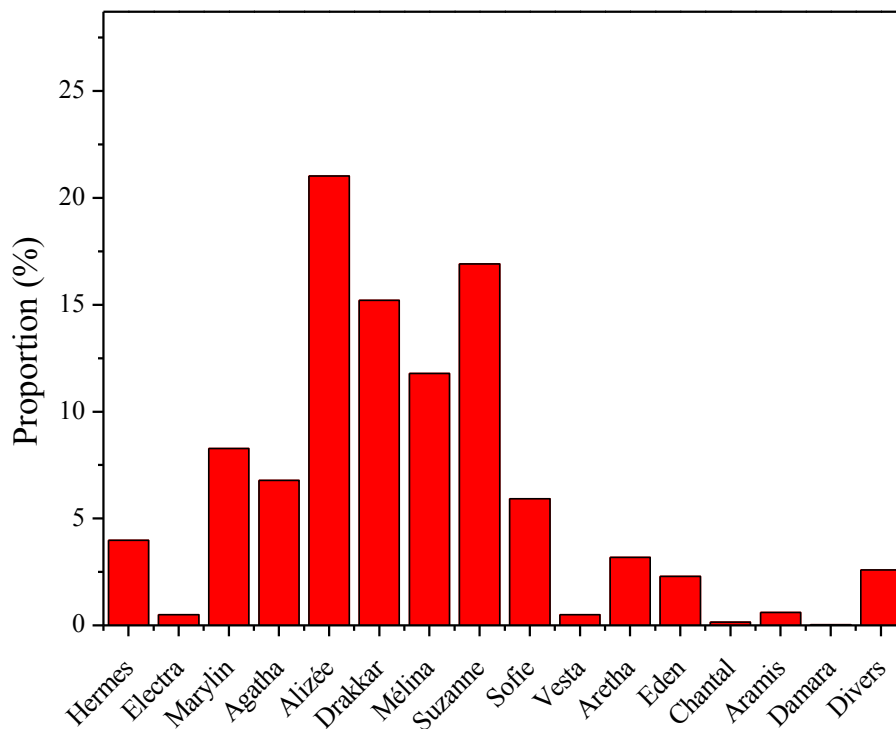


Figure 120 Proportion de surface semées par variété pour la totalité des terroirs, de 2009 à 2013.

Les proportions de variétés et leur évolution sur la période de 2009 à 2013 sont étudiées pour chaque terroir. Pour simplifier la présentation, seules les données du terroir Somme sont présentées ici (Figure 121). Le reste des données est présenté dans l'annexe A-1.

Pour faciliter la lecture, la répartition des variétés est présentée sur deux graphiques superposés pour deux terroirs : Somme (Figure 121) et St Pol (Annexe A-1).

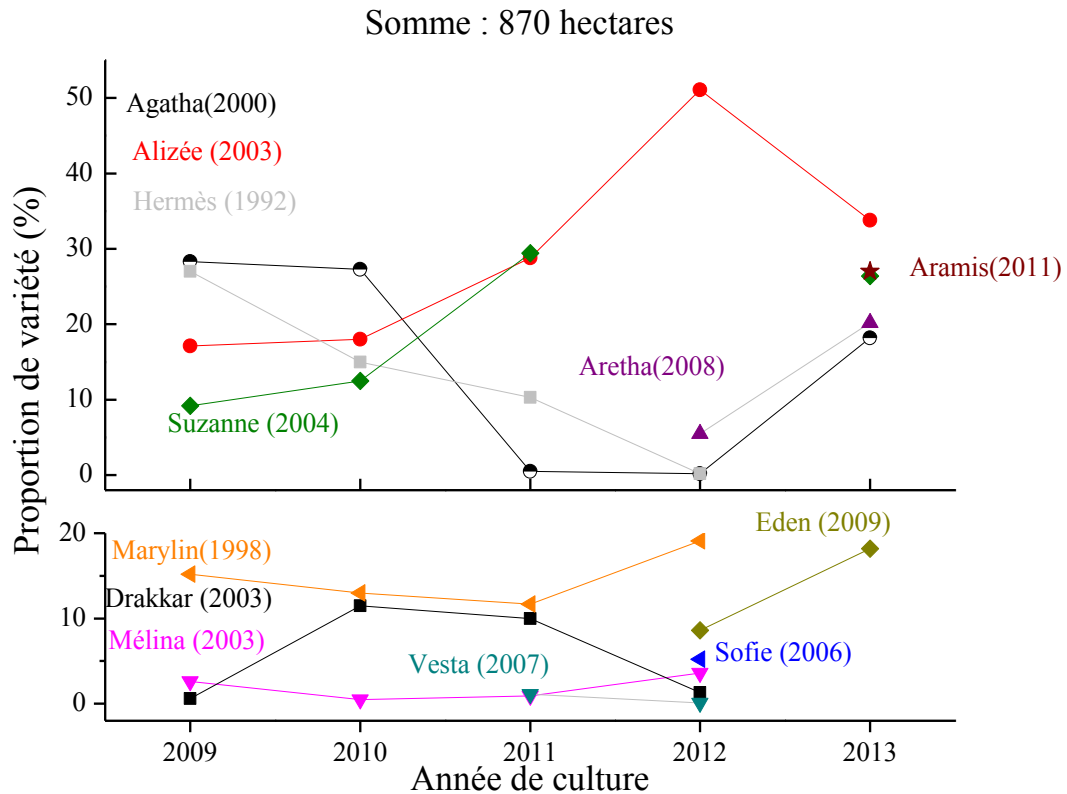


Figure 121 Proportion de variétés cultivées dans la Somme

On constate que les variétés, leur nombre et leurs proportions sont également différents pour chaque terroir. De prime abord, il est difficile d'établir une tendance générale dans le choix variétal.

Afin d'interpréter l'évolution des variétés pour chaque terroir, il faut s'intéresser aux critères de choix (Bert, 2013). On peut distinguer quatre critères généraux: La productivité, la précocité de la variété, la résistance aux maladies et à la verse. Par ailleurs l'expérience du responsable de culture et des agriculteurs est aussi à prendre en compte.

La productivité est un des critères les plus importants. Le rendement en paille et la richesse déterminent la productivité et la rentabilité de la culture. Le rendement en paille varie en fonction des conditions pédoclimatiques, donc en fonction des terroirs. Par contre la richesse en fibres est un paramètre intrinsèque d'une variété, malgré qu'il soit influencé par les conditions de croissance.

La précocité des plantes est à interpréter en fonction des conditions pédoclimatiques de chaque parcelle. On parle de précocité de "pousse", de floraison et de maturité. D'une manière générale, les variétés les plus précoces sont adaptées aux terres se réchauffant rapidement au printemps. Les variétés plus tardives sont adaptées aux terres plus fraîches.

Enfin, sur des parcelles propices à la verse et/ou aux maladies, le choix d'une variété résistante aux deux risques est primordial.

Avant l'enregistrement d'une variété, celle-ci subit de nombreux tests sous contrôle des organismes officiels (Groupement d'Etude et de contrôle de Variétés Et des Semences (GEVES), Arvalis) afin d'évaluer ses caractéristiques. Pour aider les agriculteurs et teilleurs à choisir les variétés de lin, l'organisme Arvalis fournit tous les ans des résultats d'essais réalisés sur les variétés enregistrées afin de préciser ou confirmer les caractéristiques de chacune, établies lors de leur enregistrement (Tableau 37). Ces résultats sont valables pour un terroir donné et donne uniquement une tendance générale.

Pour chaque terroir d'approvisionnement de l'entreprise Van Robaeys, le choix variétal est effectué dans les variétés enregistrées, en fonction des rendements obtenus les années précédentes. Dans le but d'obtenir des rendements élevés, le plus important dans la sélection est l'adéquation entre la parcelle et la variété cultivée. En effet, au sein d'un terroir, il est nécessaire de tenir compte des antécédents de chaque parcelle: cultures précédentes (céréales, fourrages, etc), composition et structure du sol, températures moyennes, précipitations moyennes, historique des maladies, de la verse. On parle donc de "micro-terroir". La consultation des caractéristiques techniques des variétés est une aide dans le choix variétal mais ne peut pas se substituer à une connaissance approfondie du terroir et de l'historique de chaque parcelle.

L'analyse des données présentée ci-avant a été effectuée à partir d'informations communiquées par Van Robaeys Frères. On constate une évolution des proportions de variétés au cours du temps. Certaines variétés présentes en 2009 sont complètement abandonnées aujourd'hui, d'autres apparaissent avec des proportions variables. Ces variations peuvent être expliquées par plusieurs paramètres décrits ci-après:

En premier lieu, les variétés majoritaires sont sélectionnées pour leur capacité à donner de bons rendements dans un terroir particulier. Le caractère homogène ou hétérogène d'un terroir peut résulter en un nombre important de variétés. Les variétés minoritaires peuvent correspondre à l'adéquation à des parcelles ayant un historique particulier, ou à des parcelles d'essais. En effet, les essais sont nécessaires afin de comparer les variétés entre-elles et d'étudier le potentiel des nouvelles récemment enregistrées. Il faut prévoir le remplacement des variétés actuelles, lorsque celles-ci ne seront plus disponibles. Dans la Figure 120, les faibles proportions des variétés Damara et Chantal correspondent à des parcelles de test. Il faut noter qu'une variété inscrite au catalogue européen appartient à son créateur et est protégée pendant 20 ans, puis tombe dans le domaine public et n'est plus produite. Une

nouvelle variété peut être inscrite si elle présente une amélioration par rapport aux variétés les plus utilisées du moment. Cependant, les apports d'une variété sont établis par rapport à une variété de référence, pour un terroir donné et doivent être validée en grandes parcelles. Il y a un retard de 3 à 4 ans entre l'année d'inscription et la disponibilité des graines sur le marché car celles-ci doivent être multipliées, ce qui laisse environ 15 ans pour exploiter une variété. Par exemple la production de la variété Hermès a été stoppée en 2012, Marylin et Agatha seront les prochaines variétés à disparaître et les surfaces cultivées diminuent. Les variétés bien établies sont Drakkar, Alizée, Suzanne, Mélina et Sophie. Les dernières variétés apparues sont Damara, Chantal, Aramis, Eden, Vesta, Aretha. On note par ailleurs qu'Aramis n'est pas retrouvée partout et qu'Eden se développe.

En deuxième lieu après l'adéquation variété/parcelle, des critères plus pratiques influencent le choix des variétés. Par exemple, il est recommandé de semer des variétés de même précocité dans une même zone afin de pouvoir grouper les travaux de récolte (arrachage, retournage, enroulage). Ces travaux sont souvent réalisés par l'entreprise qui dispose des machines adaptées. En outre, l'achat d'une variété en grande quantité permet de bénéficier d'économies.

En résumé, le choix variétal est effectué en partie en fonction des données disponibles auprès des organismes officiels et des fournisseurs de semences, mais surtout en fonction des conditions pédoclimatiques de chaque parcelle, grâce à une connaissance approfondie du terroir. Il faut par contre noter que la création des variétés est faite sur des critères de rendements, de résistance aux maladies, à la verse, et non sur des critères de résistance mécanique des fibres. La rotation des variétés est rapide et rend la sélection de variété pour l'étude de leurs propriétés mécaniques difficile.

Les propriétés mécaniques des fibres de 10 lots de lin Van Roabeys Frères sont étudiées dans la deuxième partie de ce chapitre. Compte tenu des nombreuses variétés utilisées, des évolutions au cours du temps, du souhait de disposer d'informations générales, les lots de fibres ont été sélectionnés parmi les lots étudiés au cours de ces travaux de doctorat.

2. ETUDE DES PROPRIETES MECANQUES MOYENNES DES FIBRES DE LIN PRODUITES PAR VAN ROBAEYS FRERES.

2.1. Etude de la variabilité des propriétés mécaniques de fibres de lin

2.1.1. Propriétés mécaniques moyennes

Dans le but d'évaluer les propriétés mécaniques des fibres de lin produites par l'entreprise Van Robaeys Frères, 10 lots de lin ont été testés par traction de fibres unitaires. Ces lots de fibres proviennent de terroirs, de variétés et d'années de cultures différentes. Huit variétés, cinq terroirs et six années sont représentées (Tableau 40). Les lots utilisés pour cette étude ont été caractérisés au cours de ces travaux de doctorat. Ils n'ont pas été sélectionnés spécifiquement dans le but d'une comparaison variétale. Les propriétés mécaniques des fibres unitaires provenant de ces lots ont été mesurées par essais de traction. Tous ces lots possèdent une qualité standard pour le textile, sauf le lot V334 sélectionné dans le but d'étudier un incident de culture.

Lots	Année de culture	Variété	Terroir	n	Ø (µm)	σ (MPa)	E (GPa)	ε (%)
T0377	2010	Suzanne	Somme	63	17,4 ± 2,9	949 ± 294	53 ± 15	1,8 ± 0,4
M1412	2003	Hermès	Somme	56	18,0 ± 3,1	810 ± 405	52 ± 15	1,5 ± 0,5
V488	2012	Alizée	Somme	49	14,1 ± 3,4	937 ± 400	47 ± 16	2,1 ± 0,5
U178	2011	Alizée	Flandre	50	14,8 ± 4,4	1036 ± 265	56 ± 10	1,9 ± 0,5
S748	2009	Agatha	Flandre	68	17,5 ± 3,4	1214 ± 280	57 ± 11	2,3 ± 0,5
S776	2009	Drakkar	Oise	65	15,3 ± 2,2	1209 ± 298	60 ± 11	2,1 ± 0,4
S839	2009	Suzanne	Hesdin	53	15,2 ± 2,8	1048 ± 384	58 ± 15	1,9 ± 0,6
Q581*	2007	Electra	Hesdin	45	15,8 ± 4,5	808 ± 342	51 ± 15	1,6 ± 0,5
S5021	2009	Marylin	Hesdin	69	17,7 ± 3,8	1097 ± 356	51 ± 13	1,4 ± 0,6
V334	2012	Drakkar	Vexin	74	17,2 ± 3,4	742 ± 335	35 ± 12	2,1 ± 1,1
Moyenne				/	16,4 ± 3,5	980 ± 365	51 ± 15	1,9 ± 0,6

Tableau 40 Propriétés mécaniques en traction des fibres unitaires des lots étudiés. n: nombre de fibres testées. *:Lot étudié par (Bourmaud et al., 2010).

Le Tableau 40 présente les propriétés mécaniques moyennes en traction obtenues pour les différents lots. Le diamètre moyen des fibres (\varnothing), le module d'Young (E), la contrainte à rupture (σ) et la déformation à rupture (ε) sont présentés.

Les valeurs moyennes de module d'Young varient de 35 GPa à 60 GPa, la contrainte à rupture varie de 742 MPa à 1214 MPa, l'allongement à rupture varie de 1,4 % à 2,3 % et le diamètre varie de 14,1 μm à 18,0 μm . On note donc des dispersions entre les différents lots, mais également au sein d'un même lot au vu des écart-types présentés. Les Figure 122, Figure 123 et Figure 124 permettent de comparer graphiquement la dispersion des propriétés autour de la moyenne des dix lots pour chaque grandeur mesurée. Les valeurs moyennes sont $E=51,4$ GPa, $\sigma=980$ MPa, $\varepsilon=1,9$ %.

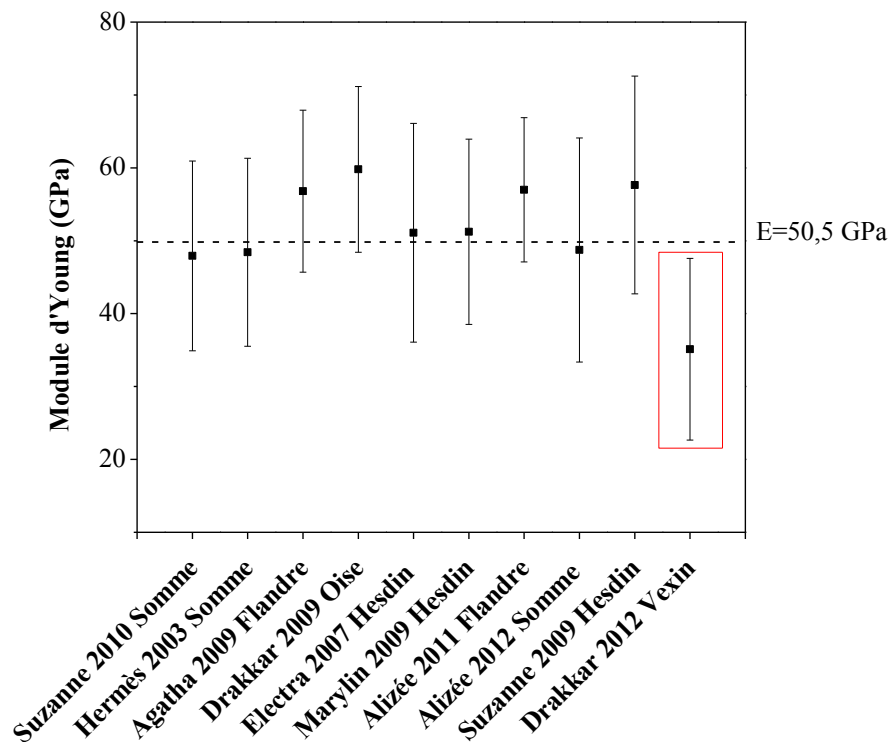


Figure 122 Module d'Young moyen en traction des lots de fibres étudiés.

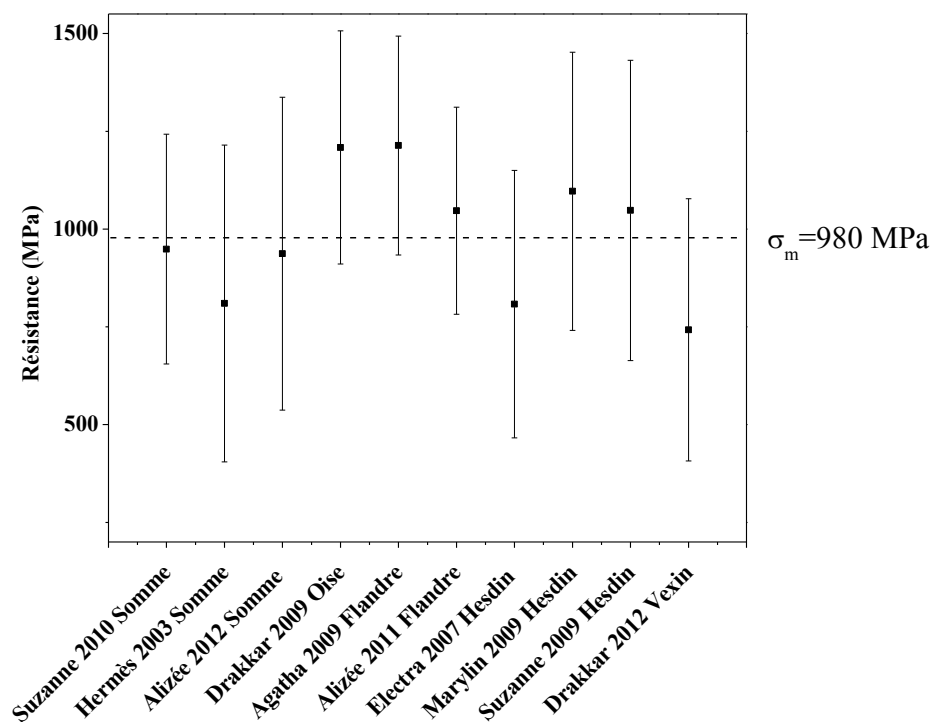


Figure 123 Contrainte à rupture moyenne en traction des lots de fibres étudiés.

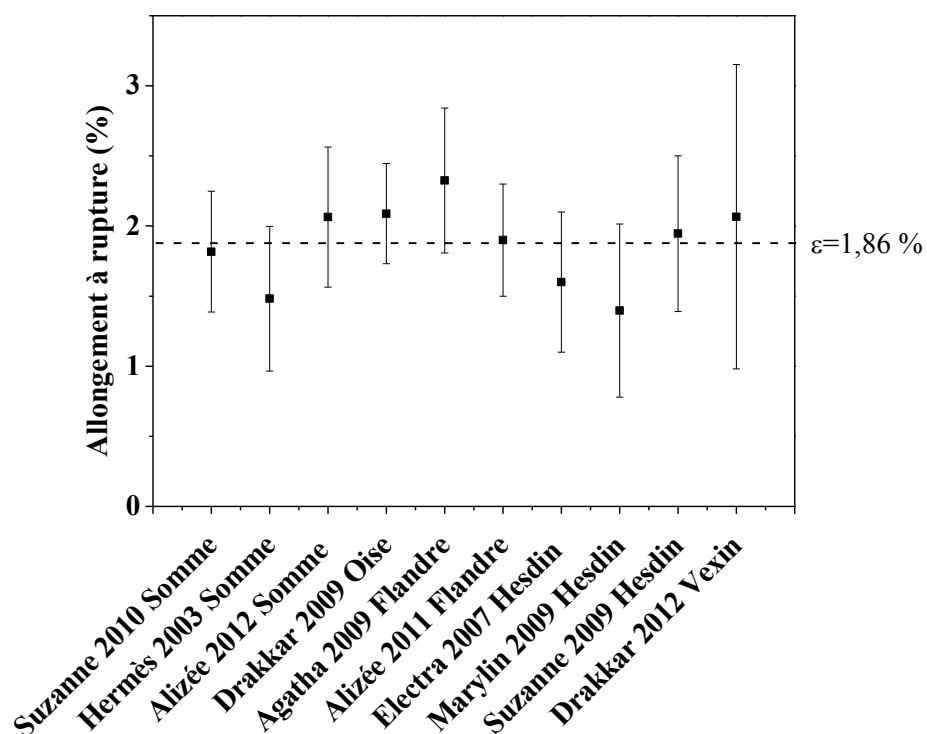


Figure 124 Allongement à rupture moyen en traction des lots de fibres étudiés.

La Figure 125 présente l'évolution du module d'Young et de la contrainte à rupture des fibres en fonction de leur diamètre pour toutes les fibres des 10 lots étudiés. Il est difficile d'observer une tendance quant à l'influence du diamètre sur les propriétés des fibres.

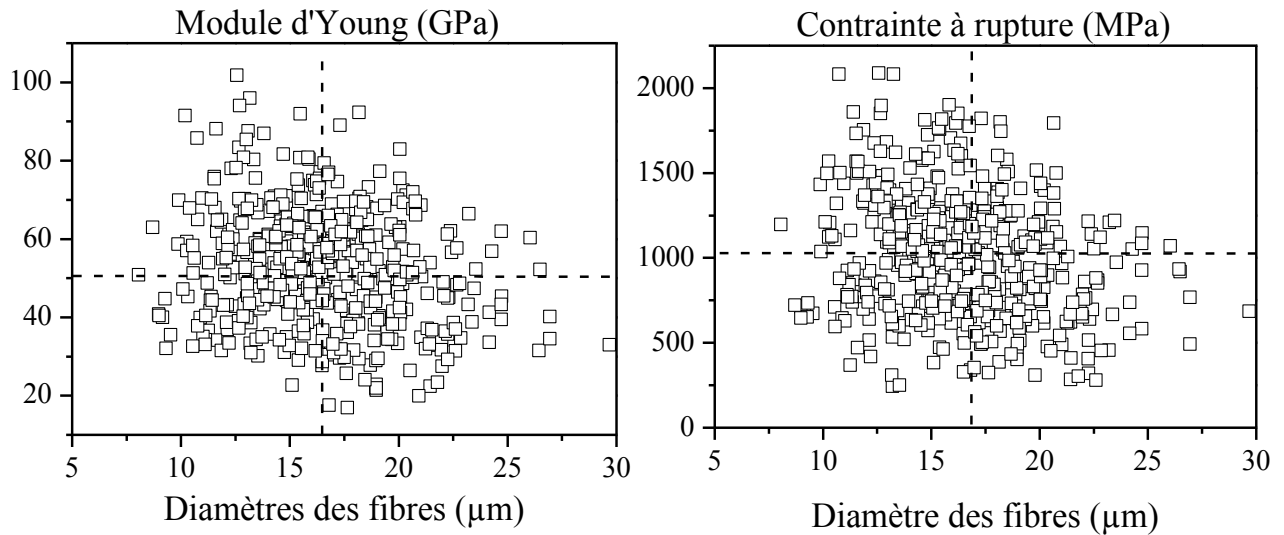
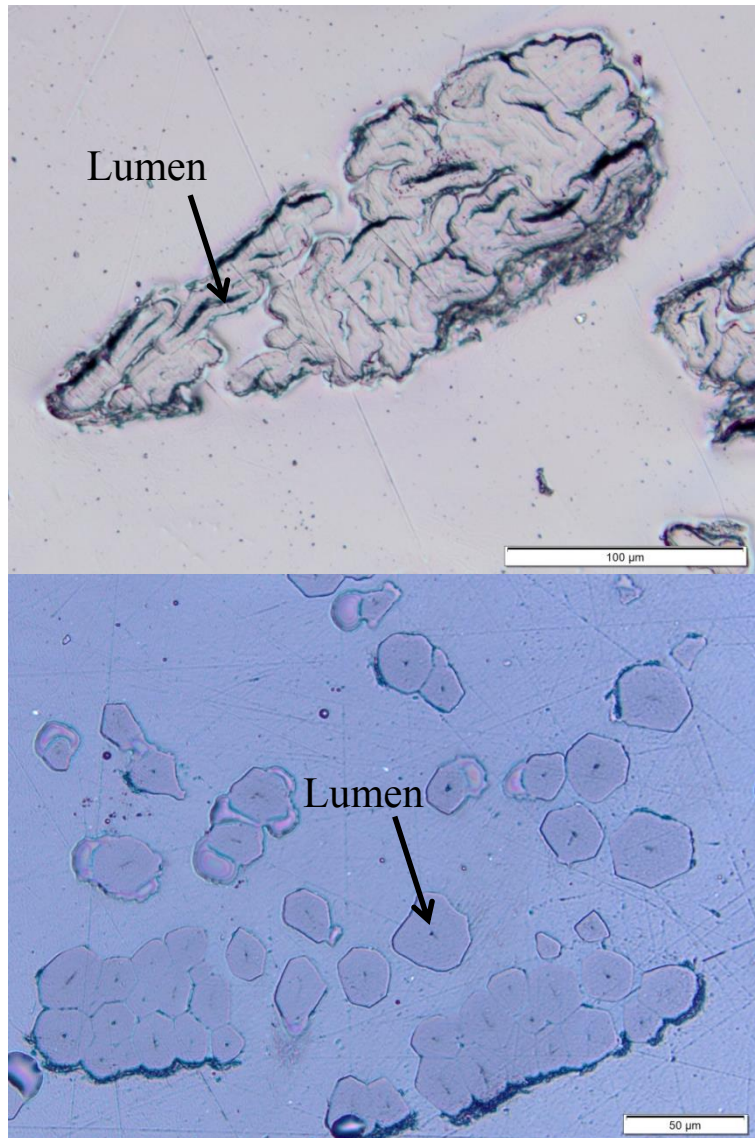


Figure 125 Module d'Young et contrainte à rupture des fibres en fonction de leur diamètre pour les dix lots étudiés.

2.1.2. Analyse d'un lot particulier

On note sur la Figure 122, les faibles valeurs de module de traction pour le lot V334 (Drakkar 2012 Vexin) par rapport aux valeurs mesurées sur les autres lots. Afin d'avoir des éléments pour déterminer l'origine de ces performances limitées, les sections transverses des faisceaux du lot V334 ont été observées par microscopie optique, afin d'évaluer la morphologie des fibres (Figure 126a).



(a) V334
Drakkar
2012
Vexin

(b) S776
Drakkar
Oise
2009

Figure 126 Observations par microscopie optique de coupe transverse de faisceaux de fibres. (a) V334 Drakkar Vexin 2012 (b) Drakkar Oise 2009. Le grossissement est le même pour les deux photos.

Les vues en coupe de section transverse de faisceaux de V334 sont comparées à celles du lot S776 (Figure 126a). Il s'agit de la même variété, cultivée dans l'Oise en 2009. Ce dernier lot possède des propriétés mécaniques élevées supérieures à la moyenne des lots de l'étude et sert ici de référence. Des faisceaux issus du milieu de la plante sont observés. Au vu des observations, il s'avère que les fibres de V334 possèdent des sections aux formes très allongées et tortueuses. Pour certaines fibres le rapport grande dimension/petite dimension est de 4. Pour beaucoup de fibres, un lumen très important est observable. Pour S776, les sections possèdent une forme polygonale avec 5 ou 6 faces, ce qui est habituellement le cas pour un lin de qualité. La surface de lumen est très faible voire inexistante.

Les lumens importants de V334 indiquent que les fibres des plantes n'ont pas pu se développer jusqu'à maturité. Au cours de la vie de la plante, après une phase d'élongation, les parois des fibres s'épaississent de la paroi primaire vers le lumen (Gorshkova et al., 2012).

Au niveau de l'historique de culture du lot, celui-ci a été versé deux fois lors de la phase de croissance et a reçu de fortes doses de régulateurs de croissance afin de limiter la verse. Les principaux facteurs entraînant la verse du lin sont un apport trop important d'azote dans le sol, une densité de plante trop importante et le choix d'une variété trop sensible (Bert et al., 2014; Heller et al., 2014; Menoux et al., 1982). A ces facteurs s'ajoutent des conditions de croissance trop rapides sous l'influence d'une température et d'une humidité élevées. La verse survient souvent à la suite de fortes pluies d'orages accompagnées de vent.

Certains régulateurs de croissance utilisent des principes actifs inhibiteurs des hormones de croissance des plantes, comme par exemple le paclobutrazole antagoniste des gibbérellines, ou des dérivés d'éthylène. Les régulateurs de croissance ont l'avantage de pouvoir limiter la verse en stoppant la croissance rapide des plantes, mais également d'entraîner des retards de maturité ou même une interruption brutale de la croissance (Bert et al., 2014). La verse du lot V334 associée à l'application de régulateurs de croissance a pu perturber la croissance de la plante et donc le développement et le remplissage des fibres.

D'après les observations effectuées par microscopie optique, plusieurs hypothèses peuvent être avancées pour expliquer les faibles propriétés mécaniques mesurées en traction. La forme allongée de la section des fibres entraîne un biais important lors de la mesure de la section. De plus, la considération d'une section circulaire pour le calcul de la section résistante des fibres n'est plus valable dans ce cas. En outre, la présence d'une surface de lumen important par rapport à la surface déterminée par le périmètre externe, entraîne une surface effective de paroi plus faible. Cela conduit à surestimer la surface réelle des fibres et donc sous-estimer les propriétés en traction des fibres. Dans le cas présent la méthode de détermination des sections par mesure optique du diamètre des fibres est discutable.

Etant donnée la morphologie particulière des fibres V334 et l'erreur sur la mesure de leurs propriétés mécaniques, il convient de ne pas prendre en compte ce lot pour le calcul des propriétés mécaniques moyennes. En excluant ce dernier les propriétés moyennes obtenues pour les 9 lots de lin sont $E = 53,2 \text{ GPa}$, $\sigma = 1013 \text{ MPa}$, $\varepsilon = 1,85 \%$.

2.1.3. Comparaison des propriétés obtenues avec les données de la littérature

Un travail récent réalisé par Baley et Bourmaud (2014) a regroupé les propriétés mécaniques de 50 lots de fibres de lin textile et oléagineux cultivés durant ces 10 dernières années. Les mesures ont été effectuées dans le même laboratoire, suivant les mêmes protocoles et les mêmes conditions de caractérisation (température et humidité). Par ailleurs, Lefeuvre et al. (2014) ont mesuré les propriétés mécaniques de la variété de lin Marylin, cultivée pendant 4 années sur le même terroir (Le plateau du Neubourg). En comparaison de ces deux travaux, les propriétés mécaniques mesurées pour les lots de fibres étudiés ici sont situées dans la même gamme de valeurs (Figure 127).

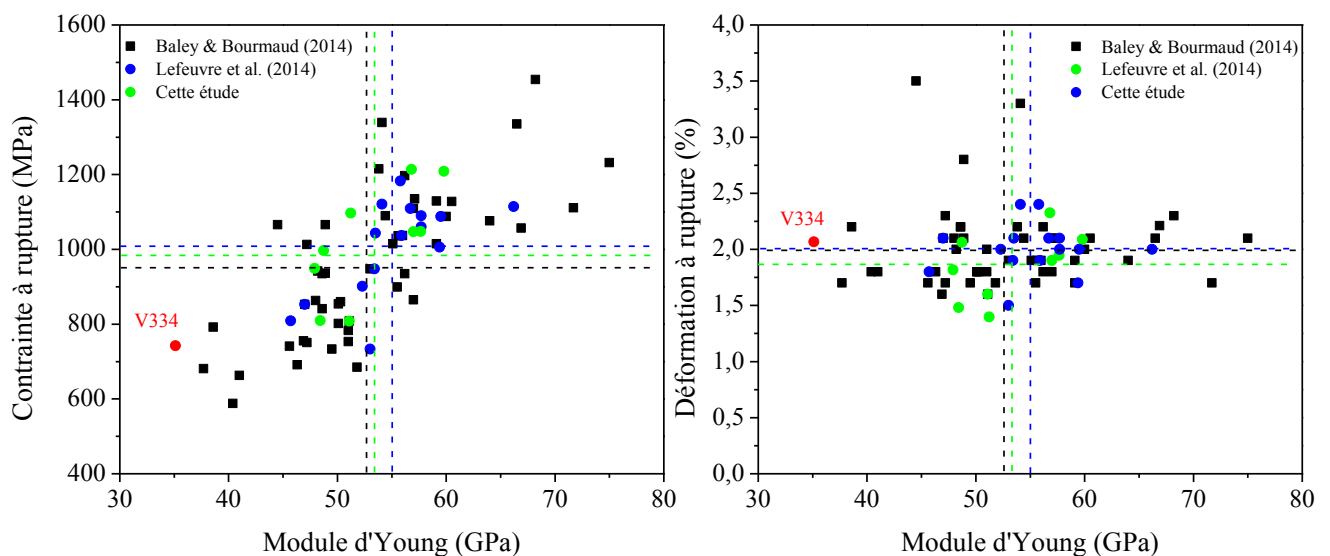


Figure 127 Contrainte à rupture moyenne et déformation à rupture moyenne en fonction du module d'Young pour les lots de l'étude, ainsi que ceux de l'étude de Baley et Bourmaud (2014) et de Lefeuvre et al. (2014). Les traits en pointillés représentent les valeurs moyennes.

L'étude de Lefeuvre et al. (2014) montre par ailleurs qu'une variation des propriétés mécaniques existe pour une même variété sur plusieurs années et qu'il existe également des variations pour une même variété au sein d'un même terroir, la même année.

Malgré toutes les précautions prises pour le choix variétal, des aléas peuvent survenir. Dans les travaux présentés ici, le lot de lin V334 a subi des dommages liés à la verse et à l'application de régulateurs de croissance, ce qui a modifié le développement des plantes et des fibres. Le degré de maturité des fibres est aussi un facteur critique qui affecte les propriétés mécaniques.

Il faut noter que pour les variétés, les années et les terroirs différents étudiés ici, il est néanmoins possible d'obtenir une certaine reproductibilité des propriétés mécaniques des fibres. Grâce au savoir-faire des chefs de plaine, le choix variétal est effectué en fonction des caractéristiques des parcelles cultivées, afin de mener à bien le développement des plantes.

Par ailleurs, il n'y a pas de lots aux propriétés mécaniques très faibles, ce qui est intéressant par rapport aux attentes de propriétés garanties, de la part des plasturgistes.

2.2. Corrélation entre les propriétés mécaniques des composites et celles des fibres unitaires de lin

Afin d'évaluer l'influence des propriétés mécaniques des fibres sur celles de matériaux composites, deux types de matériaux ont été étudiés. Il s'agit de composites à renfort unidirectionnel lin/époxy et de composites injectés Lin/PP.

2.2.1. Composites unidirectionnels (UD) lin/époxy

Ces essais sont réalisés afin d'étudier l'impact des faibles propriétés mécaniques des fibres de lin V334 sur la capacité de renforcement de matériaux composites. Les matériaux UD lin/époxy sont mis en œuvre à partir des lots V334 (Drakkar, Vexin, 2012) et V488 (Alizée, Somme, 2012), selon la procédure décrite dans le chapitre II. La matrice utilisée est une résine époxy référence Epolam 2020. Le lot V488 sert de référence. Les essais mécaniques de traction sont réalisés selon la procédure décrite dans le chapitre II.

Les résultats de tests de traction dans la direction des fibres sont présentés dans le Tableau 41. Les fractions volumiques de fibres (V_f) sont déterminées par mesure de la masse volumique des éprouvettes après s'être assuré de la faible porosité de l'éprouvette à l'aide d'observations des sections au MEB.

Matériaux	V _f (%)	E ^{exp} (GPa)	σ (MPa)	ε (%)	E ^{estimé} (GPa)
V334	/	35 ± 12 (34%)	742 ± 335 (45%)	2,1 ± 1,1 (52%)	/
V488	/	47 ± 16 (34%)	937 ± 400 (43%)	2,1 ± 0,5 (24%)	/
Epoxy	0	3,4 ± 0,1	78 ± 2	4,9 ± 0,6	3,4
V334/époxy	26 ± 1	11,9 ± 0,6 (5%)	165 ± 19 (11,5%)	1,3 ± 0,1(7,7%)	12,4
	52 ± 1	22,2 ± 1,2 (5%)	293 ± 33 (11,2%)	1,3 ± 0,1(7,7%)	20,0
V488/époxy	26 ± 0,4	16,0 ± 1,0 (6%)	234 ± 12 (5%)	1,7 ± 0,1(6%)	15,3
	48 ± 4,3	25,4 ± 1,1 (4%)	316 ± 41 (13%)	1,3 ± 0,2(15%)	25,4
Lin/époxy (Coroller et al., 2013)	23 ± 1	11 ± 1,9	165 ± 11	1,1 ± 0,08	13,7
	51 ± 4	28 ± 3,6	290 ± 22	1,1 ± 0,15	26,3
Lin/époxy (Marrot et al., 2014)	32 ± 2	18,4 ± 1,4	224 ± 18	1,2 ± 0,1	19,7
	47 ± 2	28,3 ± 2,6	253 ± 9	0,9 ± 0,2	27,7

Tableau 41 Propriétés mécaniques de composites UD époxy/lin V334 mesurées (E^{exp}) et estimées par la loi des mélanges (E^{estimé}), en fonction de la fraction volumique de fibres. Les valeurs entre parenthèses expriment les coefficients de variation (CoV).

On peut tout d'abord noter en étudiant les coefficients de variation, une diminution importante de la dispersion des propriétés mécaniques entre fibres unitaires et matériaux composites. Les composites réalisés à partir des fibres du lot V334 possèdent des propriétés mécaniques inférieures à celles des composites réalisés avec les fibres du lot V488, ce qui peut être expliqué par les différences de propriétés mécaniques des fibres unitaires. Il y a une bonne corrélation entre la rigidité des fibres et celle de composites UD pour une sollicitation de traction longitudinale.

Le module de traction expérimental des composites est comparé à une valeur estimée par une simple loi des mélanges (cf Chapitre IV) utilisant le module de traction moyen des fibres unitaires et de la matrice époxy. Le module de traction est mesuré dans la gamme $\Delta\epsilon_2$ (0,010-0,011). On constate que les valeurs de module de traction mesurées sont proches des valeurs estimées par la loi des mélanges, ce qui indique que les propriétés de rigidité des fibres sont retrouvées à l'échelle des composites (Tableau 41). Par rapport aux données de la littérature obtenues sur le même type d'éprouvettes, les valeurs de module de traction mesurées ici sont plus faibles, cependant les contraintes à rupture mesurées sont équivalentes pour une même fraction volumique de fibres (Coroller et al., 2013; Marrot et al., 2014). Coroller et al. (2013) ont mis en évidence l'importance de la division des faisceaux de fibres au niveau des performances de composites à renforts UD. Ce paramètre n'est pas pris en compte ici.

V_f	E_c expérimental (GPa)	E_f estimé (GPa)
0,26	$11,9 \pm 0,6$	$36,1 \pm 2,3$
0,52	$22,2 \pm 1,2$	$39,6 \pm 2,3$
0,26	$16,0 \pm 1,0$	$51,9 \pm 3,8$
0,48	$25,4 \pm 1,1$	$49,2 \pm 2,3$

Tableau 42 Estimation de la rigidité des fibres unitaires à partir de la rigidité des matériaux composites UD.

A l'aide de lois des mélanges (cf Chapitre IV), il est possible d'estimer le module de traction des fibres à partir des valeurs expérimentales de module de traction des composite (Tableau 42). Les valeurs de module de traction des fibres estimées sont très proches des valeurs expérimentales mesurées par essai de traction (Tableau 41). Cette méthode indirecte permet d'estimer raisonnablement le module d'Young des fibres avec une faible dispersion des valeurs. En effet, les coefficients de variation sont inférieurs à 7 %.

L'étude de composites à renfort unidirectionnel lin/époxy réalisés à partir de deux lots de fibres de lin possédant des propriétés mécaniques différentes a permis de mettre en évidence la relation entre les propriétés des fibres et celles des composites. L'utilisation d'un lot de fibres aux propriétés mécaniques faibles, ici V334, entraîne donc de faibles propriétés mécaniques à l'échelle des composites.

Nous avons étudié par la suite le comportement de composites injectés PP/lin renforcés par des fibres courtes.

2.2.1. Composites injectés Lin/PP

Des composites à matrice polypropylène renforcés par des fibres courtes de lin (30% en masse) et transformés par injection ont été réalisés à partir des lots M1412 (Hermès, 2012, Somme), T377 (Suzanne, Somme, 2010), S748 (Agatha, Flandre, 2011) et S776 (Drakkar, Oise, 2009), en suivant la procédure de mise en œuvre décrite dans le chapitre II. Ces quatre lots possèdent des propriétés mécaniques de fibres différentes. La mise en œuvre des composites a été réalisée à partir de la procédure décrite dans le chapitre II. On rappelle que ces matériaux possèdent une structure cœur/peau conférant une orientation particulière des fibres (cf. Chapitre III).

La Figure 128 présente les propriétés mécaniques en traction obtenues pour les matériaux composites en fonction des propriétés mécaniques des fibres unitaires pour la contrainte à rupture (a), le module d'Young (b), la déformation à rupture (c).

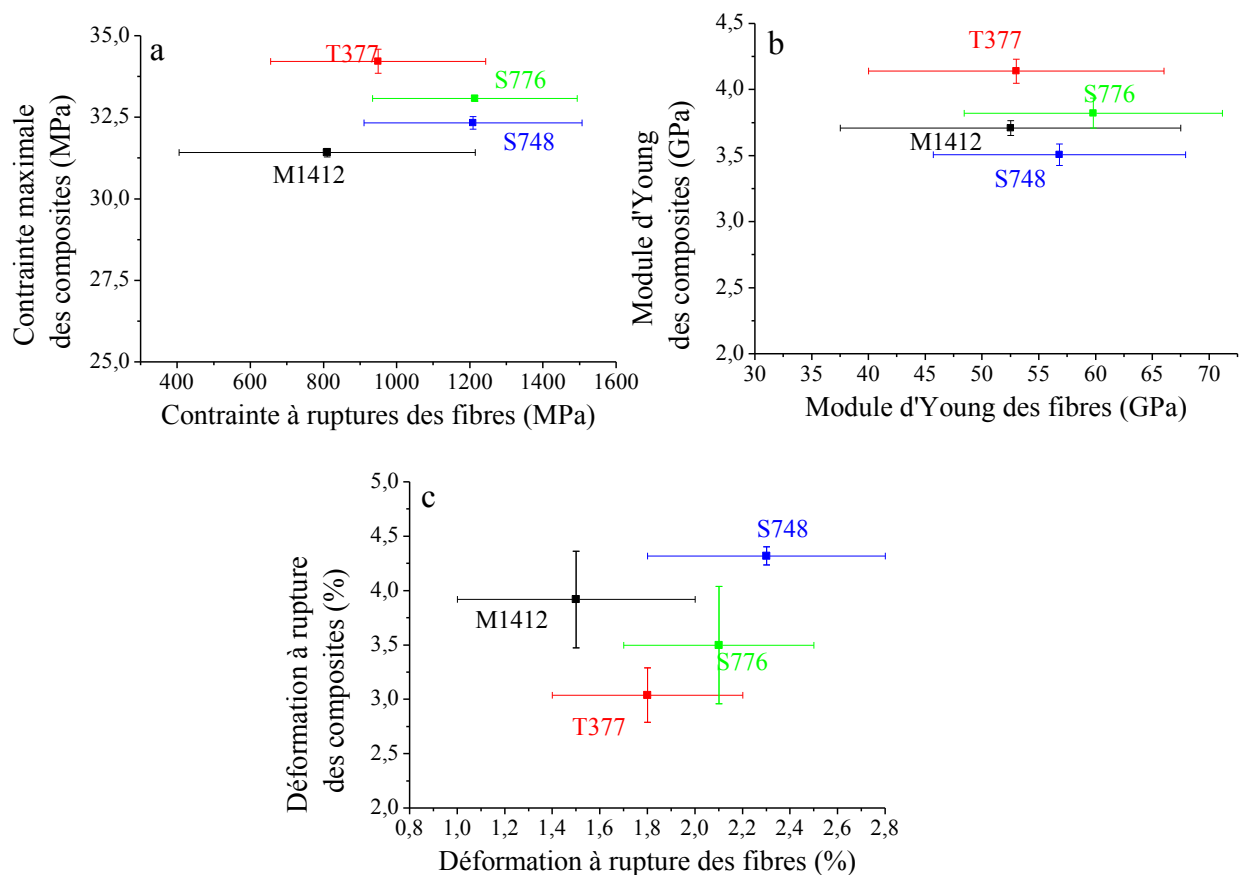


Figure 128 Relations entre les propriétés mécaniques de composites PP/lin 30% en masse et celles des fibres pour 4 lots de lin.

Lot	σ (MPa)	E (GPa)	A (%)	L/d
T0377	$34,2 \pm 0,4$ (1,2%)	$4,1 \pm 0,09$ (2,2%)	$3,0 \pm 0,25$ (8%)	$13,9 \pm 8,39$
S0748	$33,1 \pm 0,1$ (0,3%)	$3,5 \pm 0,08$ (2,3%)	$4,3 \pm 0,08$ (1,8%)	$13,7 \pm 11,2$
S0776	$32,3 \pm 0,2$ (0,7%)	$3,8 \pm 0,11$ (2,9%)	$3,5 \pm 0,54$ (15%)	$14,2 \pm 9,54$
M1412	$31,4 \pm 0,1$ (0,3%)	$3,7 \pm 0,06$ (1,6%)	$3,9 \pm 0,44$ (11,3%)	$9,8 \pm 4,90$

Tableau 43 Propriétés mécaniques en traction des éprouvettes injectées PP/lin. Les valeurs entre parenthèses expriment les coefficients de variation (CoV).

On note une très faible dispersion des propriétés mécaniques des composites injectés (Tableau 43) par rapport à la dispersion des propriétés des fibres (Tableau 40). Celle-ci est plus faible que la dispersion des propriétés mécaniques des composites UD. La faible longueur des fibres, l'effet cœur/peau, la reproductibilité de la fraction volumique de fibres d'une éprouvette à une autre et l'effet d'homogénéisation peuvent expliquer la faible dispersion des propriétés mécaniques.

Les propriétés mécaniques obtenues sont différentes pour les quatre composites mais il n'est pas possible d'établir de corrélation particulière entre les propriétés mécaniques des fibres et celles des composites. Le rapport d'aspect des renforts des éprouvettes injectées est différent d'un matériau à un autre, cependant les valeurs sont très dispersées. Un rapport d'aspect élevé correspond à une contrainte à rupture élevée (Tableau 43).

On observe par contre une différence importante de déformation à rupture entre T0377 et S0748. Ces différences ne sont pas reliées à la déformation à rupture des fibres unitaires (Tableau 41). Une des explications pourrait être la différence de cohésion des faisceaux de fibres entre T0377 et S0748

Pour des matériaux composites à fibres courtes et mis en œuvre par injection, on note peu d'influence des propriétés mécaniques des fibres de lin sur les propriétés mécaniques des composites, dans le cas de fibres de lin possédant des performances mécaniques non négligeables ($E=52$ GPa, $\sigma=810$ MPa).

3. BILAN DU CHAPITRE VI

Dans ce chapitre, deux points ont été développés : le choix des variétés de lin et la variabilité des propriétés mécaniques des fibres de lin.

Le choix variétal est un travail complexe nécessitant une parfaite connaissance du terroir et de chaque parcelle de culture. On notera par ailleurs que le choix d'une variété est fait sur des critères de rendement en biomasse et non sur des critères de résistance mécanique des fibres.

Malgré de possibles accidents de culture, liés aux aléas du climat, il est possible d'obtenir une certaine stabilité des propriétés mécaniques des fibres. On constate un module d'Young moyen de 50,5 GPa, une résistance de 980 MPa, une déformation à rupture de 1,9% avec des coefficients de variation respectifs de 37 %, 29% et 32 % pour les 10 lots étudiés ici. Les propriétés mécaniques des fibres influencent les propriétés mécaniques des composites dans le cas de matériau à renfort unidirectionnel. L'utilisation de lin versé avant maturité est à proscrire pour le renfort de composites. Dans le cas de composites injectés à fibres courtes, l'influence des propriétés des fibres est moindre. Par ailleurs, on note une nette diminution des coefficients de variation des propriétés mécaniques des composites par rapport aux coefficients de variation des propriétés mécaniques des fibres.

Ces travaux constituent une première étape afin d'établir les paramètres à faire varier lors d'une future étude systématique de l'influence des conditions pédoclimatiques et des variétés sur les propriétés mécaniques des fibres unitaires et celles de matériaux composites.

Afin d'étudier si la variété a une influence sur les propriétés mécaniques des fibres, il serait nécessaire de mesurer les propriétés mécaniques de fibres de lin issues de plusieurs variétés ayant été cultivées sur un même terroir, pendant la même année.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Les travaux de thèse de doctorat présentés dans ce manuscrit devaient répondre à un objectif de développement de l'entreprise Van Robaeys Frères et permettre d'identifier et de mieux comprendre les paramètres influençant les propriétés mécaniques des fibres élémentaires de lin, ainsi que leurs influences sur les propriétés mécaniques de matériaux composites. Le manuscrit décrit des travaux originaux sur quatre aspects de ces matériaux.

Les travaux soulignent tout d'abord l'importance d'un degré de rouissage élevé des tiges de lin afin de faciliter le teillage, d'optimiser les propriétés mécaniques des fibres et la division des faisceaux.

Le module d'Young et la contrainte à rupture des fibres unitaires de lin augmentent avec le rouissage. Néanmoins, cette augmentation des propriétés mécaniques est complexe et les mécanismes gouvernant la modification des propriétés mécaniques des fibres n'ont pas été étudiés. L'étude de la composition biochimique des fibres, le taux de cristallinité, ainsi qu'une étude des mécanismes enzymatiques pourrait permettre de comprendre l'augmentation des propriétés mécaniques des fibres avec le rouissage.

Plusieurs méthodes ont été utilisées pour estimer le degré de rouissage (colorimétrie, MEB, ATG, extractions chimiques, sorption d'eau, division des faisceaux). Le changement de couleur des fibres, du jaune au gris au cours du rouissage, a été mis en évidence par spectrocolorimétrie. L'augmentation de l'état de division des faisceaux de fibres a pu être quantifiée à l'aide d'outils d'analyse d'image.

Les propriétés mécaniques des composites injectés augmentent en fonction du degré de rouissage des fibres. Cette amélioration peut être expliquée par l'augmentation des propriétés intrinsèques des fibres et par la division plus élevée des faisceaux suite à la mise en œuvre des composites. Un traitement à l'eau des fibres a par ailleurs permis d'augmenter les propriétés mécaniques des composites injectés pour les fibres les moins rouies.

Des moyens d'évaluation rapides du degré de rouissage sont nécessaires pour le classement des lots de fibres. La mesure de la couleur des fibres pourrait être une solution rapide, fiable et peu coûteuse pour évaluer le rouissage. Cependant, afin de valider cette méthode, il sera nécessaire d'étudier les corrélations entre la couleur, l'état de division des

faisceaux et les propriétés mécaniques des fibres de manière systématique sur plusieurs champs différents

Ensuite, le produit principal de la plante de lin, la filasse, a été comparé aux étoupes, un des coproduits. Malgré la désorganisation et le fort taux d'anas présent dans les étoupes, celles-ci possèdent une longueur moyenne proche de la filasse. Celles-ci mesurent respectivement 65 cm et 75 cm de longueur.

Les propriétés mécaniques mesurées sur les fibres unitaires des deux produits sont identiques. La filasse et les étoupes sont donc constituées des mêmes fibres.

Les propriétés mécaniques de composites unidirectionnels à matrice époxy sont similaires pour un renfort filasse ou un renfort étoupes. La fraction volumique maximale atteinte est plus faible pour les étoupes. La présence d'anas peut empêcher la compaction optimale du renfort. Les valeurs mesurées de module de traction des composites suivent les valeurs estimées par la loi des mélanges pour les deux produits. Les valeurs de contrainte à rupture suivent les estimations d'une loi des mélanges modifiée, prenant en compte l'efficacité du renfort en lin.

Malgré les performances mécaniques démontrées des étoupes, il faut en limiter la création lors du teillage car leur vente, à un prix très inférieur à celui de la filasse, n'est pas économiquement viable. De plus, le prix des étoupes brutes (0,7 €/kg) par rapport à la filasse (1,7 €/kg), n'est pas un indicateur suffisant, puisque souvent, un travail de cardage est nécessaire afin de nettoyer et d'aligner les fibres. Par ailleurs les prix fluctuent au cours du temps selon l'offre et la demande. Il y a néanmoins des marchés importants pour ces matières premières dans le secteur de l'automobile, mais l'objectif n°1 reste la valorisation de la filasse.

Le troisième développement concerne les renforts non tissés. Dans une première partie, des composites à matrice PLA et renforts hydroliés ont été étudiés. Les propriétés mécaniques des composites étaient similaires pour le cas d'un renfort pur lin ou d'un renfort lin/viscose en mélange. Ce type de renfort entraîne une anisotropie des propriétés mécaniques des composites. Les propriétés obtenues étaient comparables à celles rapportées pour des composites mats de lin/PLA. Le caractère fragile de la matrice PLA limite la capacité de déformation de ces matériaux.

Dans une deuxième partie, trois renforts non tissés de lin sont comparés: un mat, un aiguilleté, un hydrolié. Ces trois préformes possèdent des microstructures différentes liées à leurs méthodes de fabrication. Les processus de production des hydroliés et des aiguilletés n'entraînent qu'une faible diminution des propriétés des fibres unitaires, cependant ils provoquent un entremêlement des fibres accompagné de courbures de fibres et de boucles. Pour la réalisation de matériaux composites à matrice PP par thermocompression, l'ajout d'un agent couplant PPgMA est nécessaire afin de bénéficier de la capacité de renforcement des fibres. Les performances mécaniques des composites renforcés par les trois types de non-tissé dépendent de la direction de sollicitation des matériaux, ce qui met en évidence l'anisotropie des renforts. Il existe donc une orientation préférentielle des fibres pour les trois renforts non tissés. En première approche, l'utilisation de modèles micromécaniques simples permet d'estimer raisonnablement la rigidité en traction des composites à renfort mat, mais ne prend pas en compte la véritable organisation des fibres, observée au sein des renforts hydroliés et aiguilletés. Pour affiner l'approche micromécanique, il serait nécessaire de définir le volume élémentaire représentatif de chaque type de renfort et de tenir compte du comportement non linéaire des fibres de lin en traction.

L'étude de composites renforcés par des non-tissés de lin a montré une hiérarchie dans les propriétés mécaniques des fibres. Le mat présente les meilleures performances et l'hydrolié les plus faibles performances. Les non-tissés hydroliés et aiguilletés n'ont pas été conçus en tant que renfort de composites. L'optimisation de leur architecture est possible. Il serait intéressant d'étudier l'influence des paramètres des processus de mise en œuvre, sur la microstructure des non-tissés et les propriétés mécaniques de composites. Par ailleurs, il faut nuancer ce classement en prenant en compte le coût des matériaux, leur capacité à être drapés, leur facilité de mise en œuvre, ou encore la possibilité d'intégrer la matrice directement lors de la fabrication (semi produits). L'analyse des impacts environnementaux grâce à l'analyse environnementale des non-tissés est par ailleurs nécessaire.

En outre l'étude est ici limitée aux propriétés quasi statiques, il faudrait étendre l'étude aux propriétés dynamiques (fatigue, impact, etc.).

Le dernier sujet approfondi est la connaissance des propriétés mécaniques des fibres de lin produites par l'entreprise Van Robaeys Frères. Trois points ont été développés : le choix des variétés de lin, la variabilité des propriétés mécaniques des fibres de lin et l'influence des propriétés des fibres sur les propriétés mécaniques de matériaux composites.

La grande diversité des variétés de lin utilisées est expliquée par l'adaptation précise du choix variétal aux conditions pédoclimatiques de chaque parcelle. Le choix d'une variété adaptée demande un savoir-faire important de la part des agriculteurs et des responsables de cultures. On note que le choix variétal et la conduite de culture sont basés sur des critères de rendements en biomasse et non sur des critères de résistance mécanique des fibres.

Les propriétés mécaniques moyennes des lots étudiés sont plutôt stables, malgré un lot dont les propriétés mécaniques sont plus faibles que la moyenne. La croissance de ce lot a été perturbée par un épisode de verse, ce qui a conduit à un mauvais remplissage des fibres et des sections de forme allongée, non polygonales.

Les propriétés mécaniques des fibres influencent les propriétés mécaniques des composites dans le cas de matériaux à renfort unidirectionnel. Dans le cas de composites injectés à fibres courtes, l'influence des propriétés des fibres est moindre. Par ailleurs, on note une nette diminution des coefficients de variation des propriétés mécaniques des composites par rapport aux coefficients de variation des propriétés mécaniques des fibres.

L'étude de l'évolution des propriétés mécaniques des fibres unitaires a montré qu'il est possible de garantir une certaine stabilité des propriétés. Afin d'étudier si la variété a une influence sur les propriétés mécaniques des fibres, il serait nécessaire de mesurer les propriétés mécaniques de fibres de lin issues de plusieurs variétés ayant été cultivées sur un même terroir, pendant la même année. La comparaison entre rendement en paille, richesse en fibres et propriétés mécaniques des fibres unitaires permettrait d'évaluer si la quantité de biomasse produite influence les propriétés mécaniques des fibres. En effet, la sélection variétale a permis d'augmenter les rendements en lin teillé de plus de 20 % en 10 ans, soit une augmentation d'environ 35 kg/ha tous les ans (Bert, 2013). Il serait intéressant d'étudier s'il y a également une évolution des propriétés mécaniques des fibres. Par ailleurs, aujourd'hui les variétés et les pratiques culturales sont adaptées au lin textile, cependant à l'avenir l'adaptation du lin pour les nouveaux débouchés demandera probablement l'évolution des variétés, des techniques culturales et des moyens de contrôle qualité.

Industriellement, il sera difficile de contrôler systématiquement les propriétés mécaniques des fibres élémentaires. Cependant, il est nécessaire de réfléchir à la mise en place de méthodes de production et de procédures de contrôle en parallèle de celles qui existent pour les marchés textiles. C'est une réflexion en cours dans l'entreprise. La connaissance des propriétés mécaniques des fibres est importante, cependant un ensemble de paramètres doivent être considérés tels que : l'adéquation de nouvelles variétés de lin à un

terroir, la maturité des plantes, le degré de rouissage, les réglages de teillage, la présence d'anas, la division des faisceaux.

Les contrôles organoleptiques (observation, toucher, etc.) utilisés pour classer le lin à destination des marchés textiles, ne fournissent pas de données chiffrées, mais une appréciation. Ils sont cependant reconnus au sein de la filière et permettent de comparer des lots de lin en fonction de leur qualité. Des travaux sont donc à conduire par la suite afin de traduire les appréciations des professionnels du lin, en données chiffrées exploitables par les industriels de la plasturgie et des composites.

Enfin, les matériaux composites renforcés par des fibres de lin, ne se développeront de manière pérenne, qu'à condition de prendre en compte l'ensemble des attentes de la filière, de la graine jusqu'à la pièce finale. En effet, la production de fibres de lin de grande qualité est basée sur l'expérience et le savoir-faire des semenciers, des agriculteurs et des teilleurs.

Les biocomposites sont des matériaux en devenir. L'usage des fibres de lin comme renfort de matériaux composites est logique. En effet, ces fibres sont disponibles et possèdent des propriétés mécaniques élevées. On peut noter en conclusion qu'un matériau développé à la fin des années 1930, nommé "Gordon-Aerolite", composé de rubans de lin et de résine phénolique, est probablement le premier exemple de composite haute performance industriel (McMullen, 1984).

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Acar, M., Harper, J.F., 2000. Textile composites from hydro-entangled non-woven fabrics. *Comput. Struct.* 76, 105–114.
- ADEME/FRD, 2011. Evaluation de la disponibilité et de l'accessibilité de fibres végétales à usage matériaux en France.
- AGPL/CIPALIN, 2005. la culture du lin textile en france.
- Akin, D.E., Foulk, J.A., Dodd, R.B., McAlister, D.D., 2001. Enzyme-retting of flax and characterization of processed fibers. *J. Biotechnol.* 89, 193–203.
- Akin, D.E., Gamble, G.R., Morrison III, W.H., Rigsby, L.L., Dodd, R.B., 1996. Chemical and Structural Analysis of Fibre and Core Tissues from Flax. *J. Sci. Food Agric.* 72, 155–165.
- Alix, S., Lebrun, L., Marais, S., Philippe, E., Bourmaud, A., Baley, C., Morvan, C., 2012. Pectinase treatments on technical fibres of flax: Effects on water sorption and mechanical properties. *Carbohydr. Polym.* 87, 177–185.
- Andersons, J., Porike, E., Sparnins, E., 2009a. The effect of mechanical defects on the strength distribution of elementary flax fibres. *Compos. Sci. Technol.* 69, 2152–2157.
- Andersons, J., Spārniņš, E., Porīķe, E., 2009b. Strength and Damage of Elementary Flax Fibers Extracted from Tow and Long Line Flax. *J. Compos. Mater.* 43, 2653–2664.
- Arbelaiz, A., Cantero, G., Fernández, B., Mondragon, I., Gañán, P., Kenny, J. m., 2005a. Flax fiber surface modifications: Effects on fiber physico mechanical and flax/polypropylene interface properties. *Polym. Compos.* 26, 324–332.
- Arbelaiz, A., Fernandez, B., Cantero, G., Llano-Ponte, R., Valea, A., Mondragon, I., 2005b. Mechanical properties of flax fibre/polypropylene composites. Influence of fibre/matrix modification and glass fibre hybridization. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 36, 1637–1644.
- Arbelaiz, A., Fernández, B., Ramos, J.A., Mondragon, I., 2006. Thermal and crystallization studies of short flax fibre reinforced polypropylene matrix composites: Effect of treatments. *Thermochim. Acta* 440, 111–121.
- Aslan, M., Chinga-Carrasco, G., Sørensen, B.F., Madsen, B., 2011. Strength variability of single flax fibres. *J. Mater. Sci.* 46, 6344–6354.
- Aslan, M., Mehmood, S., Madsen, B., Goutianos, S., 2010. The effect of processing on defects and tensile strength of single flax fibres, in: *Proceedings. Presented at the 14TH EUROPEAN CONFERENCE ON COMPOSITE MATERIALS.*
- Ausias, G., Bourmaud, A., Coroller, G., Baley, C., 2013. Study of the fibre morphology stability in polypropylene-flax composites. *Polym. Degrad. Stab.* 98, 1216–1224.
- Awal, A., Cescutti, G., Ghosh, S.B., Müssig, J., 2011. Interfacial studies of natural fibre/polypropylene composites using single fibre fragmentation test (SFFT). *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 42, 50–56.
- Baley, C., 2002. Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 33, 939–948.
- Baley, C., 2004. Influence of kink bands on the tensile strength of flax fibers. *J. Mater. Sci.* 39, 331–334.
- Baley, C., 2005. Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites, in: *Techniques de L'ingénieur.*
- Baley, C., Bourmaud, A., 2014a. Average tensile properties of French elementary flax fibers. *Mater. Lett.* 122, 159–161.

- Baley, C., Bourmaud, A., 2014b. Average tensile properties of French elementary flax fibers. *Mater. Lett.*
- Baley, C., Busnel, F., Grohens, Y., Sire, O., 2006a. Influence of chemical treatments on surface properties and adhesion of flax fibre-polyester resin. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 37, 1626–1637.
- Baley, C., Le Duigou, A., Bourmaud, A., Davies, P., 2012. Influence of drying on the mechanical behaviour of flax fibres and their unidirectional composites. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 43, 1226–1233.
- Baley, C., Morvan, C., Grohens, Y., 2005. Influence of the Absorbed Water on the Tensile Strength of Flax Fibers. *Macromol. Symp.* 222, 195–202.
- Baley, C., Perrot, Y., Busnel, F., Guezenc, H., Davies, P., 2006b. Transverse tensile behaviour of unidirectional plies reinforced with flax fibres. *Mater. Lett.* 60, 2984–2987.
- Baley, C., Perrot, Y., Davies, P., Bourmaud, A., Grohens, Y., 2006c. Mechanical Properties of Composites Based on Low Styrene Emission Polyester Resins for Marine Applications. *Appl. Compos. Mater.* 13, 1–22.
- Barbulée, A., Jernot, J.-P., Bréard, J., Gomina, M., 2014. Damage to flax fibre slivers under monotonic uniaxial tensile loading. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 64, 107–114.
- Batra, S.K., 1985. Other long vegetable fibres: abaca, banana, sisal, henequen, flax, ramie, hemp, sunn, and coir., in: Lewin, M. (Ed.), *Handbook of Fiber Chemistry*.
- Beaugrand, J., Berzin, F., 2013. Lignocellulosic fiber reinforced composites: Influence of compounding conditions on defibrization and mechanical properties. *J. Appl. Polym. Sci.* 128, 1227–1238.
- Bernasconi, A., Cosmi, F., Dreossi, D., 2008. Local anisotropy analysis of injection moulded fibre reinforced polymer composites. *Compos. Sci. Technol.* 68, 2574–2581.
- Bert, F., 2013. Lin fibre : Culture et transformation, Arvalis-Institut du végétal. ed.
- Bert, F., Morin, P., Savina, A., 2014. Choisir et décider. Lin fibre: Préconisations 2013-2014.
- Berthelot, J.-M., 2005. Matériaux composites : Comportement mécanique et analyse des structures, Édition : 4e édition. ed. Tec & Doc Lavoisier, Paris; Londres.
- Berthereau, A., Dallies, E., 2008. Fibres de verre de renforcement. *Tech. Ing.* AM5132.
- Biagiotti, J., Puglia, D., Torre, L., Kenny, J.M., Arbelaiz, A., Cantero, G., Marieta, C., Llano-Ponte, R., Mondragon, I., 2004. A systematic investigation on the influence of the chemical treatment of natural fibers on the properties of their polymer matrix composites. *Polym. Compos.* 25, 470–479.
- Bismarck, A., Aranberri-Askargorta, I., Springer, J., Lampke, T., Wielage, B., Stamboulis, A., Shenderovich, I., Limbach, H.-H., 2002. Surface characterization of flax, hemp and cellulose fibers; Surface properties and the water uptake behavior. *Polym. Compos.* 23, 872–894.
- Bledzki, A.K., 2008. The effects of acetylation on properties of flax fibre and its polypropylene composites. *EXPRESS Polym. Lett.* 2, 413–422.
- Bledzki, A.K., Fink, H.-P., Specht, K., 2004. Unidirectional hemp and flax EP- and PP-composites: Influence of defined fiber treatments. *J. Appl. Polym. Sci.* 93, 2150–2156.
- Bledzki, A.K., Gassan, J., 1999. Composites reinforced with cellulose based fibres. *Prog. Polym. Sci.* 24, 221–274.
- Bodros, E., Pillin, I., Montrelay, N., Baley, C., 2007. Could biopolymers reinforced by randomly scattered flax fibre be used in structural applications? *Compos. Sci. Technol.* 67, 462–470.
- Booth, I., Goodman, A.M., Grishanov, S.A., Harwood, R.J., 2004a. A mechanical investigation of the retting process in dew-retted hemp (*Cannabis sativa*). *Ann. Appl. Biol.* 145, 51–58.

- Booth, I., Harwood, R., Wyatt, J., Grishanov, S., 2004b. A comparative study of the characteristics of fibre-flax (*Linum usitatissimum*). *Ind. Crops Prod.* 20, 89–95.
- Bos, H.L., Donald, A.M., 1999. In situ ESEM study of the deformation of elementary flax fibres. *J. Mater. Sci.* 34, 3029–3034.
- Bos, H.L., Müssig, J., van den Oever, M.J.A., 2006. Mechanical properties of short-flax-fibre reinforced compounds. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 37, 1591–1604.
- Bos, H., Van Den Oever, M., Peters, O., 2002. Tensile and compressive properties of flax fibres for natural fibre reinforced composites. *J. Mater. Sci.* 37, 1683–1692.
- Bourmaud, A., 2011. Contribution à l'étude multi-échelles de fibres végétales et de biocomposites (Thèse doctorat). Université de Bretagne Sud, France.
- Bourmaud, A., Ausias, G., Lebrun, G., Tachon, M.-L., Baley, C., 2013a. Observation of the structure of a composite polypropylene/flax and damage mechanisms under stress. *Ind. Crops Prod.* 43, 225–236.
- Bourmaud, A., Baley, C., 2009. Rigidity analysis of polypropylene/vegetal fibre composites after recycling. *Polym. Degrad. Stab.* 94, 297–305.
- Bourmaud, A., Baley, C., 2010. Effects of thermo mechanical processing on the mechanical properties of biocomposite flax fibers evaluated by nanoindentation. *Polym. Degrad. Stab.* 95, 1488–1494.
- Bourmaud, A., Baley, C., 2012. Nanoindentation contribution to mechanical characterization of vegetal fibers. *Compos. Part B Eng.* 43, 2861–2866.
- Bourmaud, A., Morvan, C., Baley, C., 2010. Importance of fiber preparation to optimize the surface and mechanical properties of unitary flax fiber. *Ind. Crops Prod.* 32, 662–667.
- Bourmaud, A., Morvan, C., Bouali, A., Placet, V., Perré, P., Baley, C., 2013b. Relationships between micro-fibrillar angle, mechanical properties and biochemical composition of flax fibers. *Ind. Crops Prod.* 44, 343–351.
- Brown, A.E., Sharma, H. s. s., 1984. Production of polysaccharide-degrading enzymes by saprophytic fungi from glyphosate-treated flax and their involvement in retting. *Ann. Appl. Biol.* 105, 65–74.
- Brown, A.E., Sharma, H.S.S., Black, D.L.R., 1986. Relationship between pectin content of stems of flax cultivars, fungal cell wall-degrading enzymes and pre-harvest retting. *Ann. Appl. Biol.* 109, 345–351.
- Bunsell, A.R., 2009. *Handbook of Tensile Properties of Textile and Technical Fibres*. Elsevier.
- Burgert, I., 2006. Exploring the micromechanical design of plant cell walls. *Am. J. Bot.* 93, 1391–1401.
- Cantero, G., Arbelaiz, A., Llano-Ponte, R., Mondragon, I., 2003. Effects of fibre treatment on wettability and mechanical behaviour of flax/polypropylene composites. *Compos. Sci. Technol.* 63, 1247–1254.
- Célino, A., Fréour, S., Jacquemin, F., Casari, P., 2013. Characterization and modeling of the moisture diffusion behavior of natural fibers. *J. Appl. Polym. Sci.* 130, 297–306.
- Célino, A., Gonçalves, O., Jacquemin, F., Fréour, S., 2014. Qualitative and quantitative assessment of water sorption in natural fibres using ATR-FTIR spectroscopy. *Carbohydr. Polym.* 101, 163–170.
- Charlet, K., Baley, C., Morvan, C., Jernot, J.P., Gomina, M., Bréard, J., 2007. Characteristics of Hermès flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 38, 1912–1921.
- Charlet, K., Béakou, A., 2011. Mechanical properties of interfaces within a flax bundle – Part I: Experimental analysis. *Int. J. Adhes. Adhes.* 31, 875–881.
- Charlet, K., Jernot, J.-P., Breard, J., Gomina, M., 2010a. Scattering of morphological and mechanical properties of flax fibres. *Ind. Crops Prod.* 32, 220–224.

- Charlet, K., Jernot, J.P., Eve, S., Gomina, M., Bréard, J., 2010b. Multi-scale morphological characterisation of flax: From the stem to the fibrils. *Carbohydr. Polym.* 82, 54–61.
- Charlet, K., Jernot, J.P., Gomina, M., Bréard, J., Morvan, C., Baley, C., 2009. Influence of an Agatha flax fibre location in a stem on its mechanical, chemical and morphological properties. *Compos. Sci. Technol.* 69, 1399–1403.
- Chen, Y., Müller, D.H., Nießen, K., Müssig, J., 2008. Spunlaced Flax/Polypropylene Nonwovens as Auto Interior Material: Mechanical Performance. *J. Ind. Text.* 38, 69 – 86.
- Chesson, A., 1978. The Maceration of Linen Flax under Anaerobic Conditions. *J. Appl. Microbiol.* 45, 219–230.
- Coroller, G., 2013. Contribution à l'étude de matériaux composites renforcés par des fibres végétales-Cas des composites extrudés à matrice polypropylène. Université de Bretagne-Sud, Lorient.
- Coroller, G., Lefeuvre, A., Le Duigou, A., Bourmaud, A., Ausias, G., Gaudry, T., Baley, C., 2013. Effect of flax fibres individualisation on tensile failure of flax/epoxy unidirectional composite. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 51, 62–70.
- Coste, G., 2014. Non-tissés: consolidation chimique, thermique, mécanique, hydraulique [WWW Document]. Cell. Veille Technol. Grenoble INP-Pagora. URL <http://cerig.efpg.inpg.fr/tutoriel/non-tisse/page04.htm> (accessed 9.16.14).
- Cousins, W.J., 1978. Young's modulus of hemicellulose as related to moisture content. *Wood Sci. Technol.* 12, 161–167.
- Cox, H.L., 1952. The elasticity and strength of paper and other fibrous materials. *Br. J. Appl. Phys.* 3, 72.
- Davies, G.C., Bruce, D.M., 1998. Effect of Environmental Relative Humidity and Damage on the Tensile Properties of Flax and Nettle Fibers. *Text. Res. J.* 68, 623 –629.
- Davies, P., Choqueuse, D., Bourbouze, G., 2011. Micro-Tomography to Study High-performance Sandwich Structures. *J. Sandw. Struct. Mater.* 13, 7–21.
- Destaing, F., 2012. Contribution à l'étude du comportement mécanique de matériaux composites biosourcés lin/PA11 élaborés par thermocompression. Caen.
- Di Candilo, M., Ranalli, P., Bozzi, C., Focher, B., Mastromei, G., 2000. Preliminary results of tests facing with the controlled retting of hemp. *Ind. Crops Prod.* 11, 197–203.
- Duchemin, B., Thuault, A., Vicente, A., Rigaud, B., Fernandez, C., Eve, S., 2012. Ultrastructure of cellulose crystallites in flax textile fibres. *Cellulose* 19, 1837–1854.
- Duval, A., Bourmaud, A., Augier, L., Baley, C., 2011. Influence of the sampling area of the stem on the mechanical properties of hemp fibers. *Mater. Lett.* 65, 797–800.
- EDANA, 2014. European Disposables And Nonwovens Association [WWW Document]. URL <http://www.edana.org/discover-nonwovens/how-they're-made> (accessed 9.15.14).
- Elsabbagh, A., Steuernagel, L., Ziegmann, G., 2009. Effect of fiber/matrix chemical modification on the mechanical properties and water absorption of extruded flax/polypropylene composite. *J. Appl. Polym. Sci.* 111, 2279–2289.
- Ericson, M., Berglund, L., 1992. Deformation and fracture of glass-mat-reinforced polypropylene. *Compos. Sci. Technol.* 43, 269–281.
- Fages, E., Gironés, S., Sánchez-Nacher, L., García-Sanoguera, D., Balart, R., 2012. Use of wet-laid techniques to form flax-polypropylene nonwovens as base substrates for eco-friendly composites by using hot-press molding. *Polym. Compos.* 33, 253–261.
- Faruk, O., Bledzki, A.K., Fink, H.-P., Sain, M., 2012. Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010. *Prog. Polym. Sci.* 37, 1552–1596.
- Felix, J.M., Gatenholm, P., 1991. The nature of adhesion in composites of modified cellulose fibers and polypropylene. *J. Appl. Polym. Sci.* 42, 609–620.

- Franck, R.R., 2005. Bast And Other Plant Fibres. CRC Press, Woodhead Publishing, Cambridge.
- Ganster, J., Fink, H.-P., 2006. Novel cellulose fibre reinforced thermoplastic materials. Cellulose 13, 271–280.
- Garkhail, S.K., Heijenrath, R.W.H., Peijs, T., 2000. Mechanical Properties of Natural-Fibre-Mat- Reinforced Thermoplastics based on Flax Fibres and Polypropylene. Appl. Compos. Mater. 7, 351–372.
- Garkhail, S., Wieland, B., George, J., Soykeabkaew, N., Peijs, T., 2009. Transcrystallisation in PP/flax composites and its effect on interfacial and mechanical properties. J. Mater. Sci. 44, 510–519.
- Ghaffari, A., Navaee, K., Oskoui, M., Bayati, K., Rafiee-Tehrani, M., 2007. Preparation and characterization of free mixed-film of pectin/chitosan/Eudragit® RS intended for sigmoidal drug delivery. Eur. J. Pharm. Biopharm. 67, 175–186.
- Gibson, R.F., 2011. Principles of Composite Material Mechanics, Third Edition, 3 edition. ed. CRC Press, Boca Raton, Fla.
- Goodman, A., Ennos, A., Booth, I., 2002. A mechanical study of retting in glyphosate treated flax stems (*Linum usitatissimum*). Ind. Crops Prod. 15, 169–177.
- Gorshkova, T., Brutch, N., Chabbert, B., Deyholos, M., Hayashi, T., Lev-Yadun, S., Mellerowicz, E.J., Morvan, C., Neutelings, G., Pilate, G., 2012. Plant Fiber Formation: State of the Art, Recent and Expected Progress, and Open Questions. Crit. Rev. Plant Sci. 31, 201–228.
- Goubet, F., Bourlard, T., Girault, R., Alexandre, C., Vandevelde, M.-C., Morvan, C., 1995. Structural features of galactans from flax fibres. Carbohydr. Polym. 27, 221–227.
- Gourier, C., Le Duigou, A., Bourmaud, A., Baley, C., 2014. Mechanical analysis of elementary flax fibre tensile properties after different thermal cycles. Compos. Part Appl. Sci. Manuf. 64, 159–166.
- Graupner, N., Herrmann, A.S., Müssig, J., 2009. Natural and man-made cellulose fibre-reinforced poly(lactic acid) (PLA) composites: An overview about mechanical characteristics and application areas. Compos. Part Appl. Sci. Manuf. 40, 810–821.
- Halpin, J.C., Kardos, J.L., 1976. The Halpin-Tsai equations: A review. Polym. Eng. Sci. 16, 344–352.
- Hänninen, T., Thygesen, A., Mehmood, S., Madsen, B., Hughes, M., 2012. Mechanical processing of bast fibres: The occurrence of damage and its effect on fibre structure. Ind. Crops Prod. 39, 7–11.
- Hearle, J.W.S., 1963. The fine structure of fibers and crystalline polymers. I. Fringed fibril structure. J. Appl. Polym. Sci. 7, 1175–1192.
- Heller, K., Sheng, Q.C., Guan, F., Alexopoulou, E., Hua, L.S., Wu, G.W., Jankauskienė, Z., Fu, W.Y., 2014. A comparative study between Europe and China in crop management of two types of flax: linseed and fibre flax. Ind. Crops Prod.
- Henriksson, G., Akin, D.E., Hanlin, R.T., Rodriguez, C., Archibald, D.D., Rigsby, L.L., Eriksson, K.L., 1997. Identification and retting efficiencies of fungi isolated from dew-retted flax in the United States and europe. Appl. Environ. Microbiol. 63, 3950–3956.
- Herrera-Franco, P.J., Drzal, L.T., 1992. Comparison of methods for the measurement of fibre/matrix adhesion in composites. Composites 23, 2–27.
- Hill, C.A.S., Norton, A., Newman, G., 2009. The water vapor sorption behavior of natural fibers. J. Appl. Polym. Sci. 112, 1524–1537.
- Hine, P.J., Rudolf Lusti, H., Gusev, A.A., 2002. Numerical simulation of the effects of volume fraction, aspect ratio and fibre length distribution on the elastic and

- thermoelastic properties of short fibre composites. *Compos. Sci. Technol.* 62, 1445–1453.
- Hornsby, P.R., Hinrichsen, E., Tarverdi, K., 1997. Preparation and properties of polypropylene composites reinforced with wheat and flax straw fibres: Part II Analysis of composite microstructure and mechanical properties. *J. Mater. Sci.* 32, 1009–1015.
- Hounsfield, G.N., 1973. Computerized transverse axial scanning (tomography): Part 1. Description of system. *Br. J. Radiol.* 46, 1016–1022.
- Hughes, M., 2012. Defects in natural fibres: their origin, characteristics and implications for natural fibre-reinforced composites. *J. Mater. Sci.* 47, 599–609.
- Hughes, M., Carpenter, J., Hill, C., 2007. Deformation and fracture behaviour of flax fibre reinforced thermosetting polymer matrix composites. *J. Mater. Sci.* 42, 2499–2511.
- Hu, W., Ton-That, M., Perrin-Sarazin, F., Denault, J., 2010. An improved method for single fiber tensile test of natural fibers. *Polym. Eng. Sci.* 50, 819–825.
- Jauneau, A., Cabin-Flaman, A., Morvan, C., Pariot, C., Ripoll, C., Thellier, M., 1994. Polysaccharide distribution in the cellular junctions of immature fibre cells of flax seedlings. *Histochem. J.* 26, 226–232.
- Jauneau, A., Morvan, C., Lefebvre, F., Demarty, M., Ripoll, C., Thellier, M., 1992. Differential Extractability of Calcium and Pectic Substances in Different Wall Regions of Epicotyl Cells in Young Flax Plants. *J. Histochem. Cytochem.* 40, 1183–1189.
- Joffe, R., Andersons, J., Wallström, L., 2003. Strength and adhesion characteristics of elementary flax fibres with different surface treatments. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 34, 603–612.
- Karger-Kocsis, J., Harmia, T., Czigány, T., 1995. Comparison of the fracture and failure behavior of polypropylene composites reinforced by long glass fibers and by glass mats. *Compos. Sci. Technol.* 54, 287–298.
- Keckes, J., Burgert, I., Frühmann, K., Müller, M., Kölln, K., Hamilton, M., Burghammer, M., Roth, S.V., Stanzl-Tschegg, S., Fratzl, P., 2003. Cell-wall recovery after irreversible deformation of wood. *Nat. Mater.* 2, 810–813.
- Keijzer, P., Metz, P.L.J., 1992. Breeding of flax for fibre production in Western Europe, in: Sharma, H.S.S. (Ed.), *The Biology and Processing of Flax*. M Publications.
- Kessler, R.W., Becker, U., Kohler, R., Goth, B., 1998. Steam explosion of flax — a superior technique for upgrading fibre value. *Biomass Bioenergy* 14, 237–249.
- Kozłowski, P., Baraniecki, P., Barriga-Bedoya, J., 2005. Bast fibres, in: Blackburn, R. (Ed.), *Biodegradable and Sustainable Fibres*. Elsevier.
- Krenchel, H., 1964. Fibre reinforcement: theoretical and practical investigations of the elasticity and strength of fibre-reinforced materials / [WWW Document].
- Kymäläinen, H.-R., Koivula, M., Kuisma, R., Sjöberg, A.-M., Pehkonen, A., 2004. Technologically indicative properties of straw fractions of flax, linseed (*Linum usitatissimum* L.) and fibre hemp (*Cannabis sativa* L.). *Bioresour. Technol.* 94, 57–63.
- Lamy, B., Baley, C., 2000. Stiffness prediction of flax fibers-epoxy composite materials. *J. Mater. Sci. Lett.* 19, 979–980.
- Le Duc, A., 2013. Comportement et rupture de fibres cellulosiques lors de leur compoundage avec une matrice polymère. MINES ParisTech.
- Le Duc, A., Vergnes, B., Budtova, T., 2011. Polypropylene/natural fibres composites: Analysis of fibre dimensions after compounding and observations of fibre rupture by rheo-optics. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 42, 1727–1737.
- Le Duigou, A., 2010. Contribution à l'étude de biocomposites. Université de Bretagne-Sud.

- Le Duigou, A., Bourmaud, A., Balnois, E., Davies, P., Baley, C., 2012. Improving the interfacial properties between flax fibres and PLLA by a water fibre treatment and drying cycle. *Ind. Crops Prod.* 39, 31–39.
- Le Duigou, A., Davies, P., Baley, C., 2009. Seawater ageing of flax/poly(lactic acid) biocomposites. *Polym. Degrad. Stab.* 94, 1151–1162.
- Le Duigou, A., Davies, P., Baley, C., 2010. Macroscopic analysis of interfacial properties of flax/PLLA biocomposites. *Compos. Sci. Technol.* 70, 1612–1620.
- Le Duigou, A., Davies, P., Baley, C., 2011. Environmental Impact Analysis of the Production of Flax Fibres to be Used as Composite Material Reinforcement. *J. Biobased Mater. Bioenergy* 5, 153–165.
- Le Duigou, A., Deux, J.-M., Davies, P., Baley, C., 2012. PLLA/Flax Mat/Balsa Bio-Sandwich—Environmental Impact and Simplified Life Cycle Analysis. *Appl. Compos. Mater.* 19, 363–378.
- Le Duigou, A., Kervoele, A., Le Grand, A., Nardin, M., Baley, C., 2014. Interfacial properties of flax fibre–epoxy resin systems: Existence of a complex interphase. *Compos. Sci. Technol.* 100, 152–157.
- Lefevre, A., Bourmaud, A., Lebrun, L., Morvan, C., Baley, C., 2013. A study of the yearly reproducibility of flax fiber tensile properties. *Ind. Crops Prod.* 50, 400–407.
- Lefevre, A., Bourmaud, A., Morvan, C., Baley, C., 2014a. Elementary flax fibre tensile properties: Correlation between stress–strain behaviour and fibre composition. *Ind. Crops Prod.* 52, 762–769.
- Lefevre, A., Bourmaud, A., Morvan, C., Baley, C., 2014b. Tensile properties of elementary fibres of flax and glass: Analysis of reproducibility and scattering. *Mater. Lett.* 130, 289–291.
- Le Moigne, N., Oever, M. van den, Budtova, T., 2011. A statistical analysis of fibre size and shape distribution after compounding in composites reinforced by natural fibres. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 42, 1542–1550.
- Lenz, J., Schurz, J., Wrentschur, E., 1993. Properties and structure of solvent-spun and viscose-type fibres in the swollen state. *Colloid Polym. Sci.* 271, 460–468.
- Leseigneur, A., 1987. Lin des villes, lin des champs. Association pour la valorisation du patrimoine normand, St-Amand-des-Hautes-Terres (27370 Amfreville-la-Campagne).
- Lindhagen, J., Berglund, L., 1998. Microscopical damage mechanisms in glass fiber reinforced polypropylene. *J. Appl. Polym. Sci.* 69, 1319–1327.
- Livingston, E.H., 2004. Who was student and why do we care so much about his t-test?1. *J. Surg. Res.* 118, 58–65.
- Li, Y., Pickering, K.L., Farrell, R.L., 2009. Analysis of green hemp fibre reinforced composites using bag retting and white rot fungal treatments. *Ind. Crops Prod.* 29, 420–426.
- Lusti, H.R., Hine, P.J., Gusev, A.A., 2002. Direct numerical predictions for the elastic and thermoelastic properties of short fibre composites. *Compos. Sci. Technol.* 62, 1927–1934.
- Maity, S., Gon, D.P., Paul, P., 2014. A Review of Flax Nonwovens: Manufacturing, Properties, and Applications. *J. Nat. Fibers* 11, 365–390.
- Marrot, L., 2014. Contribution au développement de matériaux composites à matrices therm durcissables biosourcées et renforcées par des fibres végétales. Université de Bretagne-Sud.
- Marrot, L., Bourmaud, A., Bono, P., Baley, C., 2014. Multi-scale study of the adhesion between flax fibers and biobased thermoset matrices. *Mater. Des.* 62, 47–56.

- Martin, N., Mouret, N., Davies, P., Baley, C., 2013. Influence of the degree of retting of flax fibers on the tensile properties of single fibers and short fiber/polypropylene composites. *Ind. Crops Prod.* 49, 755–767.
- Mattrand, C., Béakou, A., Charlet, K., 2014. Numerical modeling of the flax fiber morphology variability. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 63, 10–20.
- McMullen, P., 1984. Fibre/resin composites for aircraft primary structures: a short history, 1936–1984. *Composites* 15, 222–230.
- Meijer, W.J.M., Vertregt, N., Rutgers, B., van de Waart, M., 1995. The pectin content as a measure of the retting and rettability of flax. *Ind. Crops Prod.* 4, 273–284.
- Menoux, Y., Katz, E., Eyssautier, A., de Parcevaux, S., 1982. Lodging resistance in fibre flax: environmental effects and definition of breeding criteria [expression of genotype, climatic conditions, internode length]. *Agron. Fr.*
- Mieck, K.-P., Lützkendorf, R., Reussmann, T., 1996. Needle-Punched hybrid nonwovens of flax and ppfibers—textile semiproducts for manufacturing of fiber composites. *Polym. Compos.* 17, 873–878.
- Mohanty, A.K., Misra, M., Hinrichsen, G., 2000. Biofibres, biodegradable polymers and biocomposites: An overview. *Macromol. Mater. Eng.* 276–277, 1–24.
- Mooney, C., Stolle-Smits, T., Schols, H., de Jong, E., 2001. Analysis of retted and non retted flax fibres by chemical and enzymatic means. *J. Biotechnol.* 89, 205–216.
- Morvan, C., Andème-Onzighi, C., Girault, R., Himmelsbach, D.S., Driouich, A., Akin, D.E., 2003. Building flax fibres: more than one brick in the walls. *Plant Physiol. Biochem.* 41, 935–944.
- Nair, G.R., Kurian, J., Yaylayan, V., Rho, D., Lyew, D., Raghavan, G.S.V., 2014. Microwave-assisted retting and optimization of the process through chemical composition analysis of the matrix. *Ind. Crops Prod.* 52, 85–94.
- Nakamura, K., Hatakeyama, T., Hatakeyama, H., 1981. Studies on Bound Water of Cellulose by Differential Scanning Calorimetry. *Text. Res. J.* 51, 607–613.
- Oksman, K., Mathew, A.P., Långström, R., Nyström, B., Joseph, K., 2009. The influence of fibre microstructure on fibre breakage and mechanical properties of natural fibre reinforced polypropylene. *Compos. Sci. Technol.* 69, 1847–1853.
- O’sullivan, A.C., 1997. Cellulose: the structure slowly unravels. *Cellulose* 4, 173–207.
- Pallesen, B.E., 1996. The quality of combine-harvested fibre flax for industrials purposes depends on the degree of retting. *Ind. Crops Prod.* 5, 65–78.
- Panchev, I.N., Slavov, A., Nikolova, K., Kovacheva, D., 2010. On the water-sorption properties of pectin. *Food Hydrocoll.* 24, 763–769.
- Park, J.-M., Quang, S.T., Hwang, B.-S., DeVries, K.L., 2006. Interfacial evaluation of modified Jute and Hemp fibers/polypropylene (PP)-maleic anhydride polypropylene copolymers (PP-MAPP) composites using micromechanical technique and nondestructive acoustic emission. *Compos. Sci. Technol.* 66, 2686–2699.
- Park, S., Baker, J.O., Himmel, M.E., Parilla, P.A., Johnson, D.K., 2010. Cellulose crystallinity index: measurement techniques and their impact on interpreting cellulase performance. *Biotechnol. Biofuels* 3, 10.
- Payen, J., 2013. Matériaux non tissés. *Tech. Ing. Text. Tradit. Text. Tech. base documentaire : TIB572DUO.*
- Pillin, I., Kervoelen, A., Bourmaud, A., Goimard, J., Montrelay, N., Baley, C., 2011. Could oleaginous flax fibers be used as reinforcement for polymers? *Ind. Crops Prod.* 34, 1556–1563.
- Placet, V., Cissé, O., Lamine Boubakar, M., 2014. Nonlinear tensile behaviour of elementary hemp fibres. Part I: Investigation of the possible origins using repeated progressive

- loading with in situ microscopic observations. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 56, 319–327.
- Pringle, A.V., 1953. *La théorie de la filature de lin*. Carter publications, Belfast.
- Ragoubi, M., George, B., Molina, S., Bienaimé, D., Merlin, A., Hiver, J.-M., Dahoun, A., 2012. Effect of corona discharge treatment on mechanical and thermal properties of composites based on miscanthus fibres and polylactic acid or polypropylene matrix. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 43, 675–685.
- Raveendran Nair, G., Rho, D., Yaylayan, V., Raghavan, V., 2013. Microwave assisted retting – A novel method of processing of flax stems. *Biosyst. Eng.* 116, 427–435.
- Romhány, G., Karger-Kocsis, J., Czigány, T., 2003. Tensile fracture and failure behavior of technical flax fibers. *J. Appl. Polym. Sci.* 90, 3638–3645.
- Rosemberg, J.A., 1965. Bacteria Responsible for the Retting of Brazilian Flax. *Appl. Microbiol.* 13, 991–992.
- Rosemberg, J.A., De França, F.P., 1967. Importance of Galacturonic Acid in Controlling the Retting of Flax. *Appl. Microbiol.* 15, 484–486.
- Roussière, F., Baley, C., Godard, G., Burr, D., 2012. Compressive and Tensile Behaviours of PLLA Matrix Composites Reinforced with Randomly Dispersed Flax Fibres. *Appl. Compos. Mater.* 19, 171–188.
- Russell, S., 2006. *Handbook of Nonwovens*. Woodhead Publishing.
- Salmén, L., 2004. Micromechanical understanding of the cell-wall structure. *C. R. Biol.* 327, 873–880.
- Salmon-Minotte, J., 2005. Flax, in: Franck, R.R. (Ed.), *Bast And Other Plant Fibres*. CRC Press, Woodhead Publishing, Cambridge.
- Sato, N., Kurauchi, T., Sato, S., Kamigaito, O., 1991. Microfailure behaviour of randomly dispersed short fibre reinforced thermoplastic composites obtained by direct SEM observation. *J. Mater. Sci.* 26, 3891–3898.
- Schneider, C.A., Rasband, W.S., Eliceiri, K.W., 2012. NIH Image to ImageJ: 25 years of image analysis. *Nat. Methods* 9, 671–675.
- Segal, L., Creely, J.J., Martin, A.E., Conrad, C.M., 1959. An Empirical Method for Estimating the Degree of Crystallinity of Native Cellulose Using the X-Ray Diffractometer. *Text. Res. J.* 29, 786–794.
- Setter, T.L., Laureles, E.V., Mazaredo, A.M., 1997. Lodging reduces yield of rice by self-shading and reductions in canopy photosynthesis. *Field Crops Res.* 49, 95–106.
- Sharma, H.S.S., 1986. An alternative method of flax retting during dry weather. *Ann. Appl. Biol.* 109, 605–611.
- Sharma, H.S.S., 1988. Chemical retting of flax using chelating compounds. *Ann. Appl. Biol.* 113, 159–165.
- Sharma, H.S.S., Faughey, G.J., 1999. Comparison of subjective and objective methods to assess flax straw cultivars and fibre quality after dew-retting. *Ann. Appl. Biol.* 135, 495–501.
- Sharma, H.S.S., Faughey, G., Lyons, G., 1999. Comparison of physical, chemical, and thermal characteristics of water-, dew-, and enzyme-retted flax fibers. *J. Appl. Polym. Sci.* 74, 139–143.
- Sharma, H.S.S., Faughey, G., McCall, D., 1996. Effect of Sample Preparation and Heating Rate on the Differential Thermogravimetric Analysis of Flax Fibres. *J. Text. Inst.* 87, 249–257.
- Sharma, H.S.S., Kernaghan, K., 1988. Thermogravimetric analysis of flax fibres. *Thermochim. Acta* 132, 101–109.

- Sharma, H.S.S., Lefevre, J., Boucaud, J., 1992. Role of Microbial Enzymes During Retting and their Effect on Fibre Characteristics, in: Sharma, H.S.S., Sumere, C.F.V. (Eds.), *The Biology and Processing of Flax*. M.Publications, Belfast.
- Sotton, M., Ferrari, M., 1991. Adjustment of the steam explosion treatment to extract fibres from plants, usable for textile and related end-uses., in: Focher, B., Marzetti, A., Crescenzi, V. (Eds.), *Steam Explosion Techniques: Fundamentals and Industrial Applications*. Gordon & Breach Science Publishers Ltd, New York.
- Stamboulis, A., Baillie, C.A., Garkhail, S.K., Melick, H.G.H. van, Peijs, T., 2000. Environmental Durability of Flax Fibres and their Composites based on Polypropylene Matrix. *Appl. Compos. Mater.* 7, 273–294.
- Stamboulis, A., Baillie, C.A., Peijs, T., 2001. Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 32, 1105–1115.
- Sultana, C., 1992a. Growing and harvesting of flax, in: Sharma, H.S.S., Van Sumere, C.F. (Eds.), *The Biology and Processing of Flax*. M Publications, Belfast, Northern Ireland.
- Sultana, C., 1992b. Scutching of retted-flax Straw, in: Sharma, H.S.S., Van Sumere, C.F. (Eds.), *The Biology and Processing of Flax*. M Publications, Belfast, Northern Ireland.
- Thuault, A., 2011. Approche multi-échelle de la structure et du comportement mécanique d'une fibre de lin. Caen.
- Thuault, A., Eve, S., Blond, D., Bréard, J., Gomina, M., 2013. Effects of the hygrothermal environment on the mechanical properties of flax fibres. *J. Compos. Mater.* 0021998313490217.
- Thygesen, A., Madsen, B., Bjerre, A.B., Lilholt, H., 2011. Cellulosic Fibers: Effect of Processing on Fiber Bundle Strength. *J. Nat. Fibers* 8, 161–175.
- Thygesen, L.G., Asgharipour, M.R., 2008. The effects of growth and storage conditions on dislocations in hemp fibres. *J. Mater. Sci.* 43, 3670–3673.
- Thygesen, L.G., Eder, M., Burgert, I., 2007. Dislocations in single hemp fibres—investigations into the relationship of structural distortions and tensile properties at the cell wall level. *J. Mater. Sci.* 42, 558–564.
- Van Den Oever, M.J.A., Bos, H.L., 1998. Critical fibre length and apparent interfacial shear strength of single flax fibre polypropylene composites. *Adv. Compos. Lett.* 7, 81–85.
- Van Den Oever, M.J.A., Bos, H.L., van Kemenade, M.J.J.M., 2000. Influence of the Physical Structure of Flax Fibres on the Mechanical Properties of Flax Fibre Reinforced Polypropylene Composites. *Appl. Compos. Mater.* 7, 387–402.
- Van de Velde, K., Baetens, E., 2001. Thermal and Mechanical Properties of Flax Fibres as Potential Composite Reinforcement. *Macromol. Mater. Eng.* 286, 342–349.
- Van de Velde, K., Kiekens, P., 2003. Effect of material and process parameters on the mechanical properties of unidirectional and multidirectional flax/polypropylene composites. *Compos. Struct.* 62, 443–448.
- Van de Velde, K. van de, Kiekens, P., 2001. Influence of Fiber Surface Characteristics on the Flax/Polypropylene Interface. *J. Thermoplast. Compos. Mater.* 14, 244–260.
- Van de Weyenberg, I., Ivens, J., De Coster, A., Kino, B., Baetens, E., Verpoest, I., 2003. Influence of processing and chemical treatment of flax fibres on their composites. *Compos. Sci. Technol.* 63, 1241–1246.
- Van Langenhove, L., Bruggemen, J.P., 1992. Methods of fibre analysis, in: Sharma, H.S.S. (Ed.), *The Biology and Processing of Flax*. M Publications.
- Van Sumere, C., 1992. Retting of flax with special reference to enzyme-retting, in: *The Biology and Processing of Flax*. M Publications, pp. 153–193.
- Virk, A.S., Hall, W., Summerscales, J., 2010. Failure strain as the key design criterion for fracture of natural fibre composites. *Compos. Sci. Technol.* 70, 995–999.

- Weast, R.C. (Ed.), 1981. CRC Handbook of Chemistry and Physics 62nd Edition 1981-1982. CRC Press, Inc.
- Willats, W.G.T., McCartney, L., Mackie, W., Knox, J.P., 2001. Pectin: cell biology and prospects for functional analysis, in: Carpita, N.C., Campbell, M., Tierney, M. (Eds.), Plant Cell Walls. Springer Netherlands, pp. 9–27.
- Woodings, C., 2001. Regenerated Cellulose Fibres. Woodhead Publishing.
- Zafeiropoulos, N., Baillie, C., Hodgkinson, J., 2002a. Engineering and characterisation of the interface in flax fibre/polypropylene composite materials. Part II. The effect of surface treatments on the interface. Compos. Part Appl. Sci. Manuf. 33, 1185–1190.
- Zafeiropoulos, N., Baillie, C., Matthews, F., 2001. A study of transcrystallinity and its effect on the interface in flax fibre reinforced composite materials. Compos. Part Appl. Sci. Manuf. 32, 525–543.
- Zafeiropoulos, N., Williams, D., Baillie, C., Matthews, F., 2002b. Engineering and characterisation of the interface in flax fibre/polypropylene composite materials. Part I. Development and investigation of surface treatments. Compos. Part Appl. Sci. Manuf. 33, 1083–1093.
- Zhou, X., Dai, G., Guo, W., Qunfang, Lin, 2000. Influence of functionalized polyolefin on interfacial adhesion of glass fiber-reinforced polypropylene. J. Appl. Polym. Sci. 76, 1359–1365.

ANNEXE A

Les figures suivantes concernent l'étude des variétés en fonction des terroirs de culture de lin, présentée dans le chapitre VI.

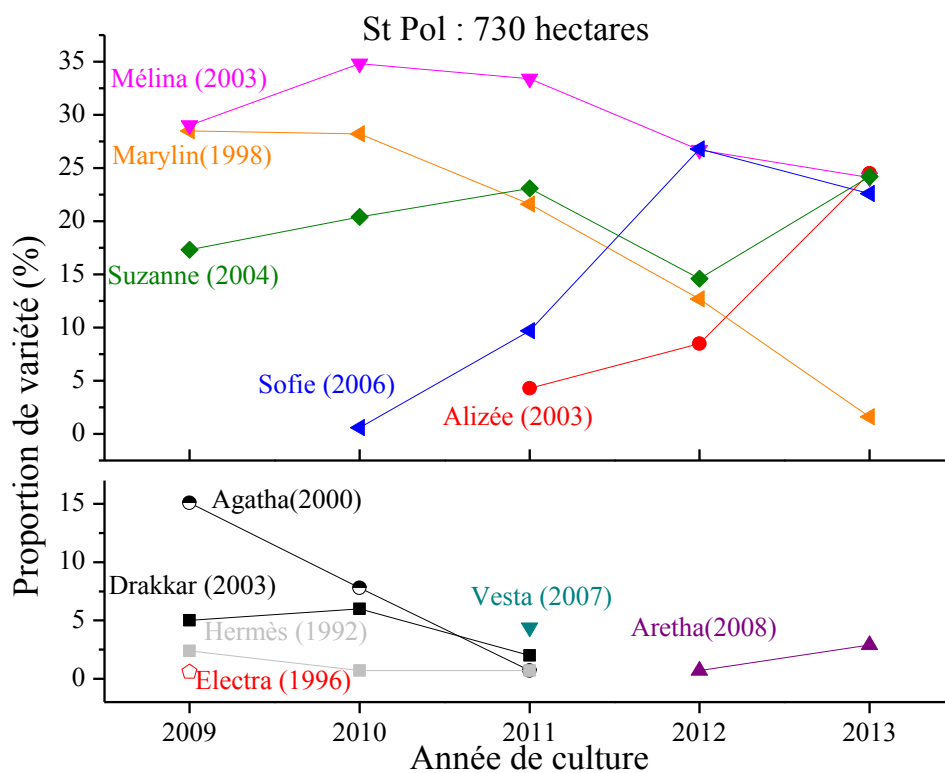


Figure 1 Proportion de variétés cultivées dans autour de St Pol

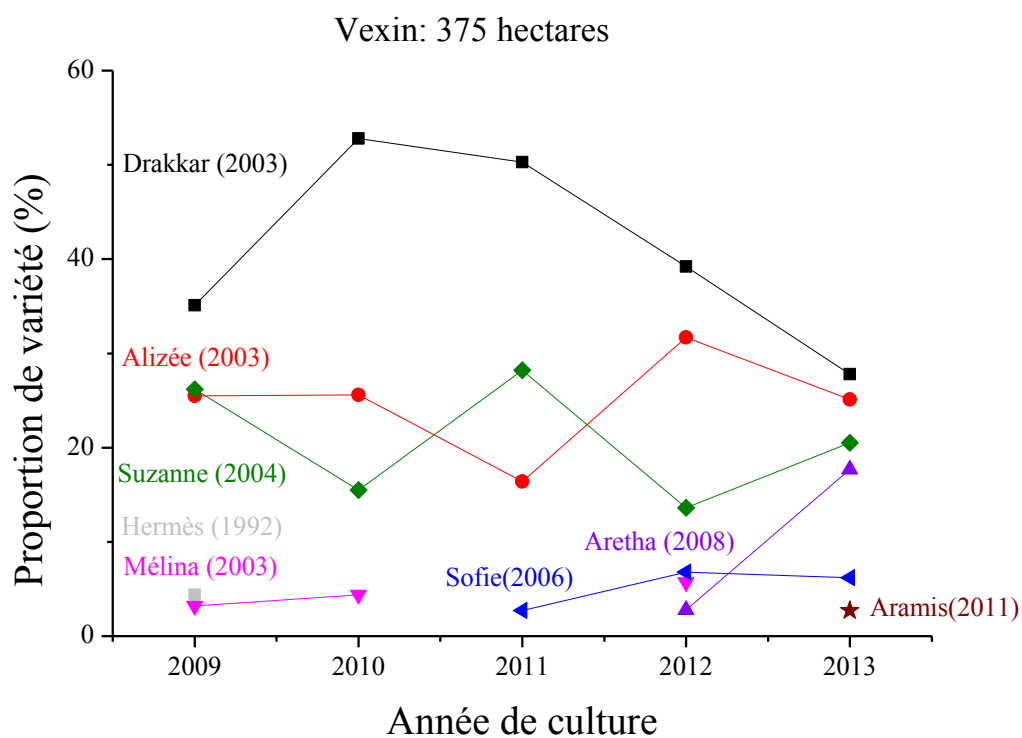


Figure 2 Proportion de variétés cultivées dans le Vexin

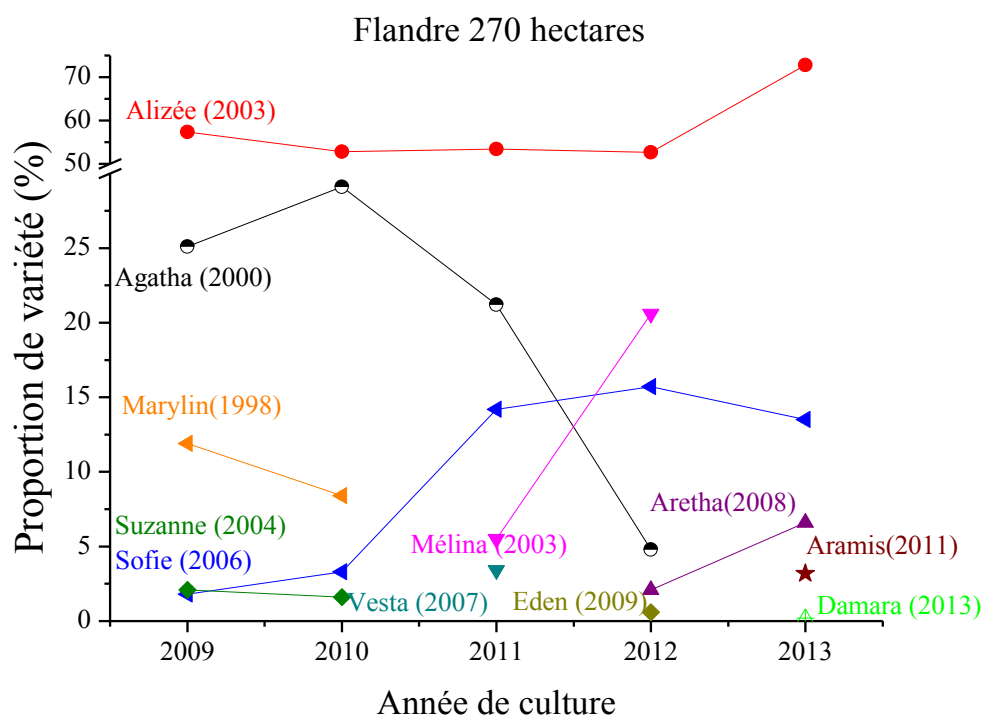


Figure 3 Proportion de variétés cultivées en Flandre

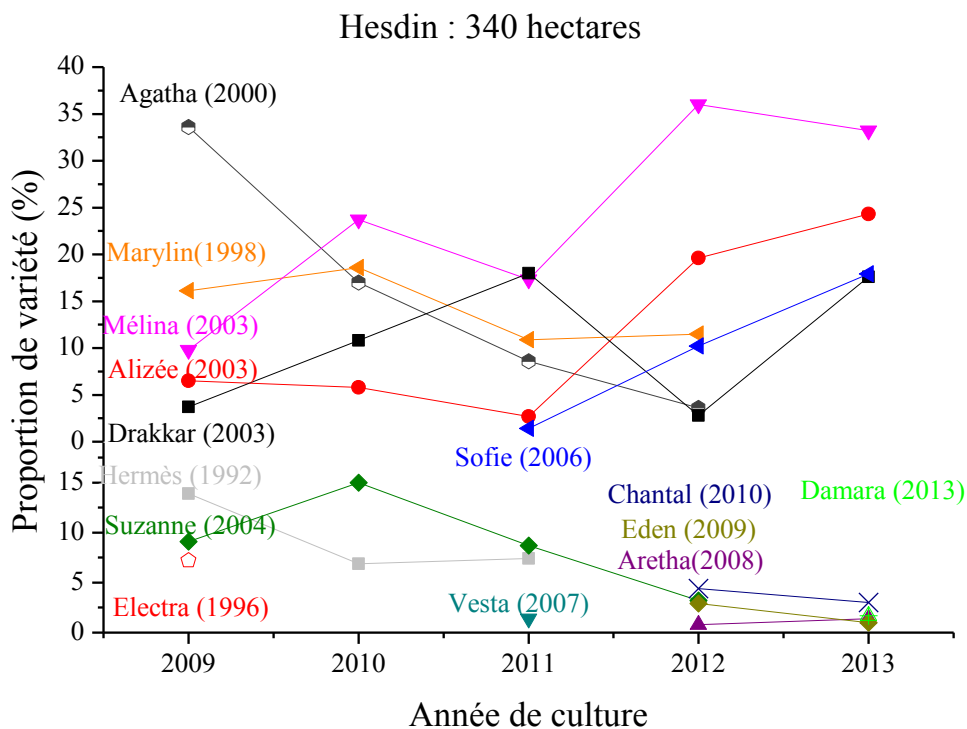


Figure 4 Proportion de variétés cultivées autour d'Hesdin

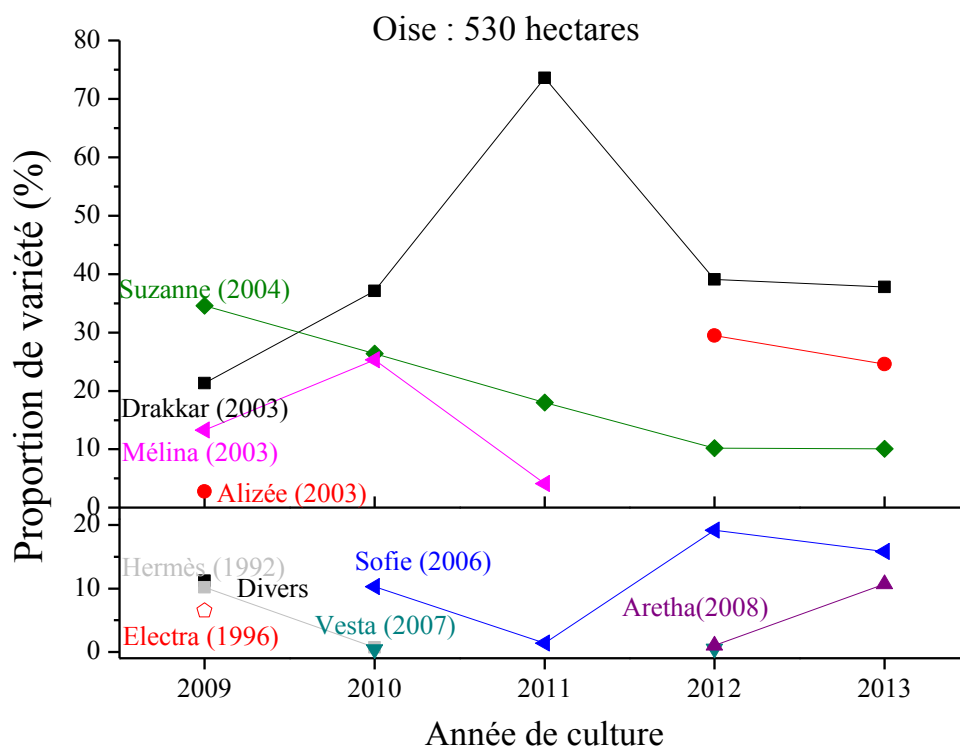


Figure 5 Proportion de variétés cultivées dans l'Oise

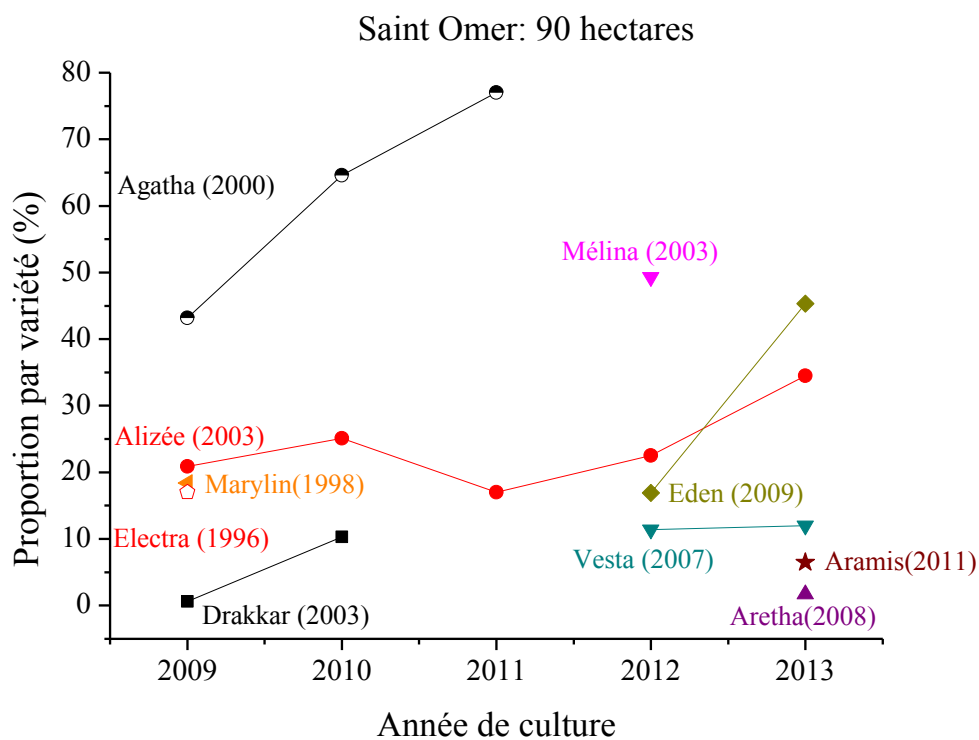


Figure 127 Proportion de variétés cultivées autour de St-Omer

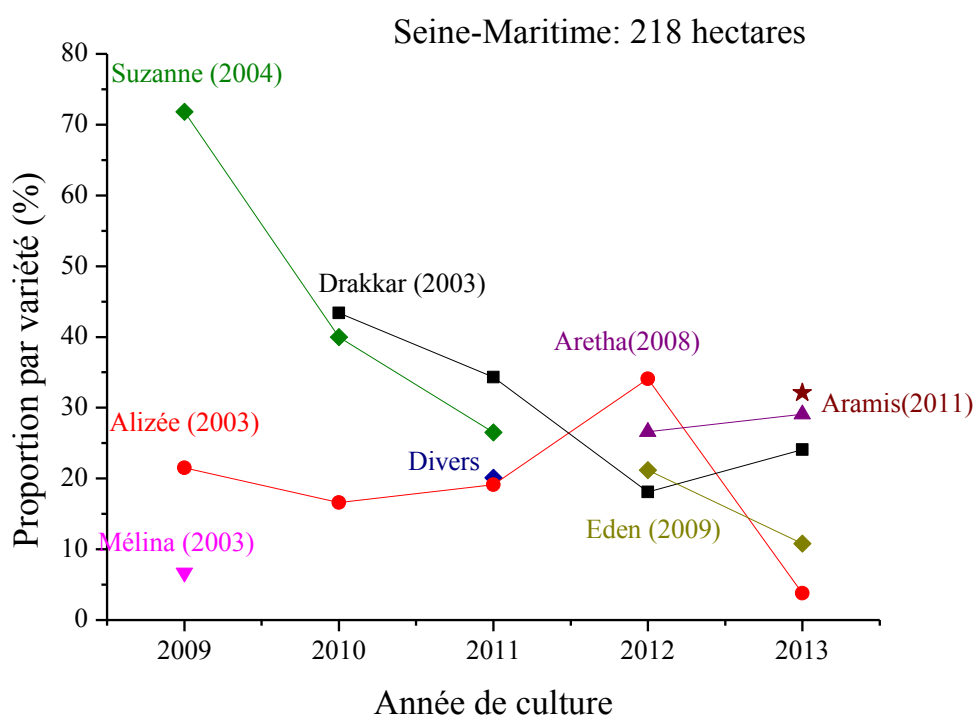


Figure 128 Proportion de variétés cultivées dans la Seine-Maritime

Résumé

Ces travaux de doctorat ont été menés dans le cadre d'un contrat CIFRE entre l'entreprise Van Robaeys Frères, l'UBS et l'IFREMER. Les travaux visent à mieux comprendre certains paramètres influençant les propriétés de fibres de lin et celles de matériaux composites.

Nous avons tout d'abord mis en évidence l'influence du degré de rouissage du lin sur les propriétés mécaniques des fibres de lin et celles de matériaux composites injectés lin/polypropylène. Ensuite, à l'aide d'une étude comparative, nous avons montré qu'il est possible de réaliser des matériaux composites unidirectionnels aux propriétés mécaniques très proches à partir de filasse ou d'étoupes de lin. Puis, l'influence de l'architecture de trois renforts non tissés de lin sur les propriétés mécaniques de composites à matrice thermoplastique a été soulignée. L'anisotropie des propriétés mécaniques de ces matériaux a été mise en évidence. Enfin, la connaissance des propriétés mécaniques de fibres de lin produites par l'entreprise Van Robaeys Frères a été approfondie. On note une relation directe entre les propriétés mécaniques des fibres et celles de composites à renfort unidirectionnel. La relation est plus complexe dans le cas de composites injectés à fibres courtes.

Abstract

This research study has been carried out during a CIFRE joint project between the Van Robaeys Frères Company, UBS and IFREMER. The work aims to improve understanding of the properties of both flax fibres and composite materials reinforced with flax.

First, the influence of the degree of retting of flax fibers on the tensile properties of single fibers and short fiber/polypropylene composites has been shown.

Then, the properties of scutched flax and flax tow were compared. We have shown that it is possible to reach similar tensile properties for unidirectional composite materials manufactured from the two products.

Moreover, the influence of three different flax nonwoven reinforcements on the mechanical properties of thermoplastic matrix composites was studied. These materials were found to show anisotropy of tensile properties.

Finally, the mechanical properties of the flax fibres processed by the Van Robaeys Frères Company were examined. A straightforward relationship was found between the tensile properties of the fibres and the tensile properties of unidirectional composite materials. The relationship is more complex for short fibre injected composites.